

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/009310

International filing date: 17 May 2005 (17.05.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-226382  
Filing date: 03 August 2004 (03.08.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 16 June 2005 (16.06.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 4 年 8 月 3 日

出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 4 - 2 2 6 3 8 2

パリ条約による外国への出願  
に用いる優先権の主張の基礎  
となる出願の国コードと出願  
番号

The country code and number  
of your priority application,  
to be used for filing abroad  
under the Paris Convention, is

J P 2 0 0 4 - 2 2 6 3 8 2

出 願 人  
Applicant(s): 株式会社半導体エネルギー研究所

2 0 0 5 年 6 月 1 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



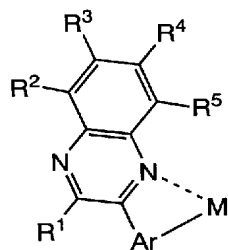
【書類名】	特許願
【整理番号】	P008070
【提出日】	平成16年 8月 3日
【あて先】	特許庁長官 殿
【発明者】	
【住所又は居所】	神奈川県厚木市長谷3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内
【氏名】	井上 英子
【発明者】	
【住所又は居所】	神奈川県厚木市長谷3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内
【氏名】	瀬尾 哲史
【発明者】	
【住所又は居所】	神奈川県厚木市長谷3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内
【氏名】	下垣 智子
【発明者】	
【住所又は居所】	神奈川県厚木市長谷3 9 8 番地 株式会社半導体エネルギー研究所内
【氏名】	山崎 寛子
【特許出願人】	
【識別番号】	000153878
【氏名又は名称】	株式会社半導体エネルギー研究所
【代表者】	山崎 舜平
【手数料の表示】	
【予納台帳番号】	002543
【納付金額】	16,000円
【提出物件の目録】	
【物件名】	特許請求の範囲 1
【物件名】	明細書 1
【物件名】	図面 1
【物件名】	要約書 1

【書類名】 特許請求の範囲

【請求項 1】

一般式（１）で表される構造を含む有機金属錯体。

【化 0 1】



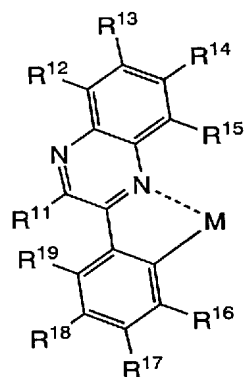
(1)

（式中、R<sup>1</sup>～R<sup>5</sup>は、それぞれ、水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。Ar はアリール基または複素環基を表す。また、Mは第 9 族元素または第 10 族元素を表す。）

【請求項 2】

一般式（２）で表される構造を含む有機金属錯体。

【化 0 2】



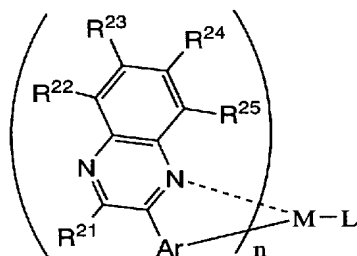
(2)

（式中、R<sup>11</sup>～R<sup>15</sup>は、それぞれ、水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。R<sup>16</sup>～R<sup>19</sup>は、それぞれ、水素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基、電子吸引性置換基のいずれかを表す。Mは第 9 族元素または第 10 族元素を表す。）

【請求項 3】

一般式（３）で表される有機金属錯体。

【化 0 3】



(3)

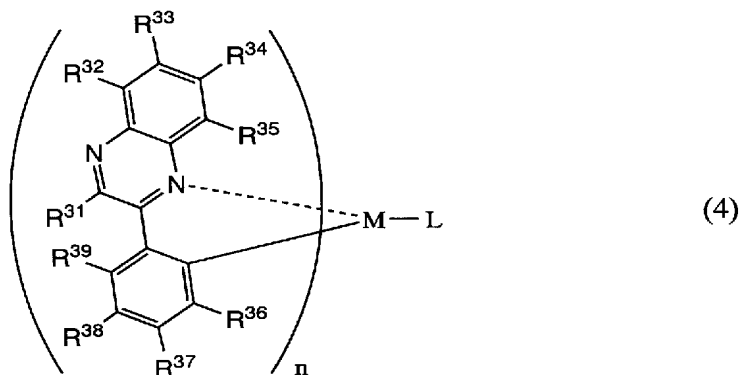
（式中、R<sup>21</sup>～R<sup>25</sup>は、それぞれ、水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。Ar はアリール基または複素環基を表す。Mは第 9 族元素または第 10 族元素を表す。Mが第 9 族元素のときは n = 2、Mが第 10 族元素のときは n = 1 である。L は、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の配位子、またはカルボキシ基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、のいずれ

れかを表す。)

【請求項 4】

一般式 (4) で表される有機金属錯体。

【化 0 4】



(式中、 $R^{31} \sim R^{35}$ は、それぞれ、水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。 $R^{36} \sim R^{39}$ は、それぞれ、水素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、複素環基、電子吸引性置換基のいずれかを表す。また、Mは第9族元素または第10族元素を表し、前記Mが第9族元素の場合は $n = 2$ 、第10族元素の場合は $n = 1$ となる。またLは、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の配位子、またはカルボキシル基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、のいずれかを表す。)

【請求項 5】

前記Arは電子吸引性置換基を有することを特徴とする請求項1または請求項3に記載の有機金属錯体。

【請求項 6】

前記 $R^{16} \sim$ 前記 $R^{19}$ の少なくとも一は電子吸引性置換基であることを特徴とする請求項2に記載の有機金属錯体。

【請求項 7】

前記 $R^{36} \sim$ 前記 $R^{39}$ の少なくとも一は電子吸引性置換基であることを特徴とする請求項4に記載の有機金属錯体。

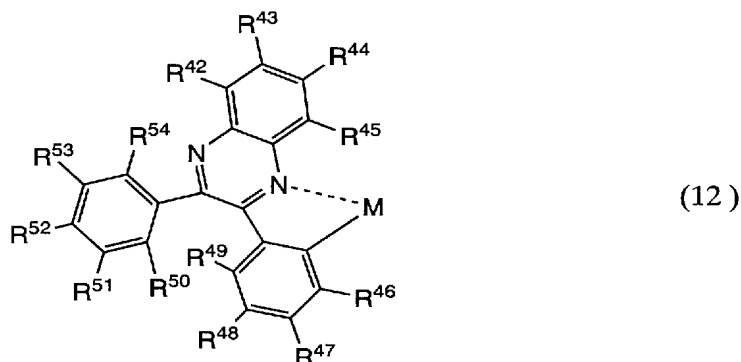
【請求項 8】

前記電子吸引性置換基は、ハロゲン基、ハロアルキル基、シアノ基のいずれかであることを特徴とする請求項5乃至請求項7のいずれか一項に記載の有機金属錯体。

【請求項 9】

一般式 (12) で表される構造を含む有機金属錯体。

【化 0 5】

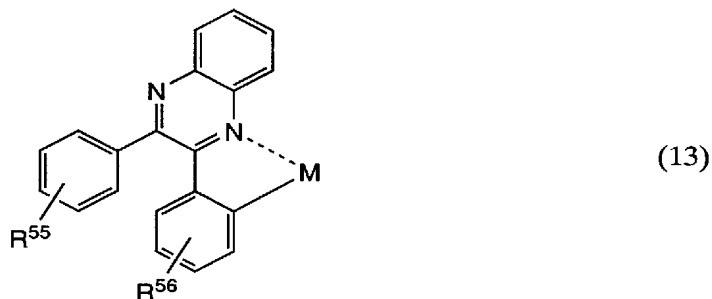


(式中、 $R^{42} \sim R^{54}$ は、それぞれ、水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基、電子吸引性置換基のいずれかを表す。Mは第9族元素または第10族元素を表す。)

【請求項10】

一般式(13)で表される構造を含む有機金属錯体。

【化06】

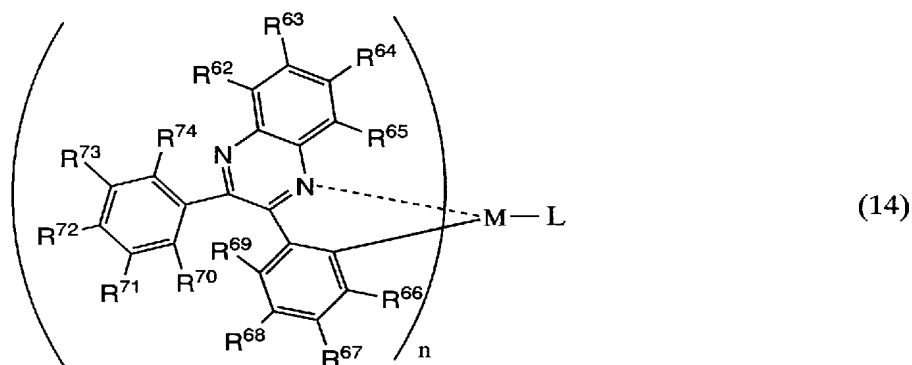


一般式(13)において、 $R^{55}$ 、 $R^{56}$ は、それぞれ、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基、電子吸引性置換基のいずれかを表す。Mは第9族元素または第10族元素を表す。

【請求項11】

一般式(14)で表される有機金属錯体。

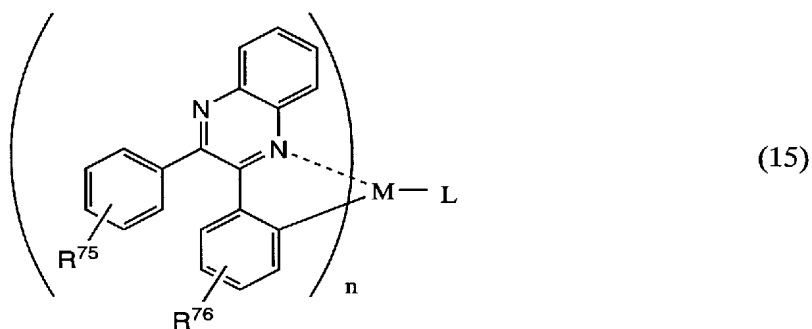
【化07】



(式中、 $R^{62} \sim R^{74}$ は、それぞれ、水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基、電子吸引性置換基のいずれかを表す。Mは第9族元素または第10族元素を表し、Mが第9族元素のときは $n=2$ 、Mが第10族元素のときは $n=1$ となる。Lは、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の配位子、またはカルボキシ基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、のいずれかを表す。)

【請求項12】

一般式(15)で表される有機金属錯体。



(式中、 $R^{75}$ 、 $R^{76}$ は、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基、電子吸引性置換基のいずれかを表す。Mは第9族元素または第10族元素を表し、Mが第9族元素のときは $n=2$ 、Mが第10族元素のときは $n=1$ となる。Lは、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の配位子、またはカルボキシル基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、のいずれかを表す。)

【請求項 1 3】

前記 $R^{46}$ ～前記 $R^{49}$ の少なくとも一は、電子吸引性置換基であることを特徴とする請求項 9 に記載の有機金属錯体。

【請求項 1 4】

前記 $R^{56}$ は電子吸引性置換基であることを特徴とする請求項 1 0 に記載の有機金属錯体。

【請求項 1 5】

前記 $R^{66}$ ～前記 $R^{69}$ の少なくとも一は、電子吸引性置換基であることを特徴とする請求項 1 1 に記載の有機金属錯体。

【請求項 1 6】

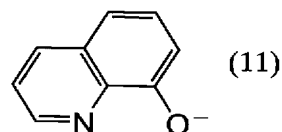
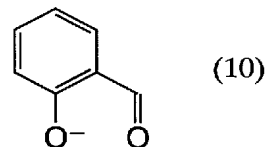
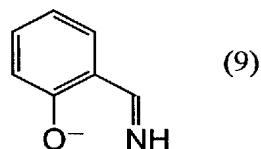
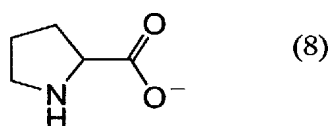
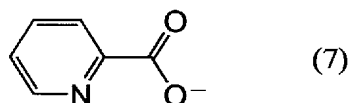
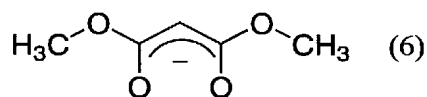
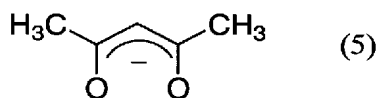
前記 $R^{56}$ は電子吸引性置換基であることを特徴とする請求項 1 2 に記載の有機金属錯体。

【請求項 1 7】

前記電子吸引性置換基は、ハロゲン基、ハロアルキル基、シアノ基のいずれかであることを特徴とする請求項 9 乃至請求項 1 6 のいずれか一項に記載の有機金属錯体。

【請求項 1 8】

前記Lは構造式(5)～(11)のいずれかで表される配位子であることを特徴とする請求項 3、請求項 4、請求項 1 1、請求項 1 2 のいずれか一項に記載の有機金属錯体。



【請求項 1 9】

一対の電極間に、請求項 1 乃至請求項 1 8 のいずれか一項に記載の有機金属錯体を含む層を有する発光素子。

【請求項 2 0】

請求項 1 乃至請求項 1 8 のいずれか一項に記載の有機金属錯体を発光物質として用いている発光素子。

【請求項 2 1】

請求項 1 乃至請求項 1 8 のいずれか一項に記載の有機金属錯体を蛍光性化合物の増感剤として用いていることを特徴とする発光素子。

【請求項 2 2】

請求項 1 9 乃至請求項 2 1 のいずれか一項に記載の発光素子が複数配置されていることを特徴とする発光装置。

【請求項 2 3】

請求項 1 9 乃至請求項 2 1 のいずれか一項に記載の発光素子を画素として用いていることを特徴とする発光装置。

【請求項 2 4】

請求項 2 2 または請求項 2 3 に記載の発光装置を表示部に用いていることを特徴とする電子機器。



【書類名】 明細書

【発明の名称】 有機金属錯体およびそれを用いた発光素子、発光装置

【技術分野】

【0001】

本発明は電流励起によって発光することのできる物質に関する。また、その物質を用いた発光素子、発光装置に関する。

【背景技術】

【0002】

有機化合物を用いた発光素子は、電界を加えることで有機化合物を含む層（または有機化合物膜）が発光する素子である。その発光機構は、電極間に有機化合物膜を挟んで電圧を印加することにより、陰極から注入された電子および陽極から注入されたホールが有機化合物膜中で再結合して分子励起子を形成し、その分子励起子が基底状態に戻る際にエネルギーを放出して発光すると言われている。

【0003】

このような発光素子において、通常、有機化合物膜は $1\mu\text{m}$ を下回るほどの薄膜で形成される。また、このような発光素子は、有機化合物膜そのものが光を放出する自発光型の素子であるため、従来の液晶ディスプレイに用いられているようなバックライトも必要ない。従って、このような発光素子は極めて薄型軽量に作製できることが大きな利点である。また、例えば $100\sim 200\text{nm}$ 程度の有機化合物膜において、キャリアを注入してから再結合に至るまでの時間は、有機化合物膜のキャリア移動度を考えると数十ナノ秒程度であり、キャリアの再結合から発光までの過程を含めてもマイクロ秒以内のオーダーで発光に至る。従って、非常に応答速度が速いことも特長の一つである。さらに、このような発光素子はキャリア注入型の発光素子であるため、直流電圧での駆動が可能であり、ノイズが生じにくい。駆動電圧に関しては、まず有機化合物膜の厚みを $100\text{nm}$ 程度の均一な超薄膜とし、また、有機化合物膜に対するキャリア注入障壁を小さくするような電極材料を選択し、さらにはヘテロ構造（ここでは二層構造）を導入することによって、 $5\sim 5\text{V}$ で $100\text{cd}/\text{m}^2$ の十分な輝度が達成されている（例えば、非特許文献1参照）。

【0004】

こういった薄型軽量、高速応答性、直流低電圧駆動などの素子特性に加え、有機化合物を用いた発光素子は、その発光色のバリエーションに富んでいることも大きな利点の一つと言える。その要因は、有機化合物自体の多様性である。すなわち、分子設計（例えば置換基の導入）等により様々な発光色の材料を開発できるという柔軟性が、色彩の豊かさを生んでいる。この色彩の豊かさを活かした発光素子の最も大きな応用分野は、フルカラーのフラットパネルディスプレイであると言える。なぜなら、赤色、緑色、青色という光の三原色を発光できる有機化合物は多数存在するため、それらをパターンニングすることによって、容易にフルカラー化が達成できるからである。

【0005】

前述したような、薄型軽量、高速応答性、直流低電圧駆動といった素子特性も、フラットパネルディスプレイにふさわしい特性と言える。しかし、近年さらなる発光効率を上げる試みとして、蛍光材料ではなく燐光材料を用いることが挙げられている。有機化合物を用いた発光素子においては、分子励起子が基底状態に戻る際に発光するが、その発光には励起一重項状態（ $S^*$ ）からの発光（蛍光）と励起三重項状態（ $T^*$ ）からの発光（燐光）が可能であり、蛍光材料を用いた場合は $S^*$ からの発光（蛍光）のみが寄与する。

【0006】

しかしながら、発光素子における $S^*$ と $T^*$ の統計的な生成比率は、 $S^*:T^*=1:3$ であると考えられている（例えば、非特許文献2参照）。従って、蛍光材料を用いた発光素子における内部量子効率（注入したキャリアに対して発生するフォトンの割合）の理論的限界は、 $S^*:T^*=1:3$ であることを根拠に $25\%$ とされている。言い換えれば、蛍光材料を用いた発光素子の場合、注入したキャリアのうち少なくとも $75\%$ は無駄に消費されるのである。

#### 【0007】

逆に言えば、 $T^*$ からの発光、すなわち燐光を利用できれば発光効率は向上する（単純には3～4倍）と考えられるが、一般的な有機化合物は室温において、 $T^*$ からの発光（燐光）は観測されず、通常は $S^*$ からの発光（蛍光）のみが観測される。有機化合物の基底状態は通常、一重項基底状態（ $S_0$ ）であるため、 $T^* \rightarrow S_0$ 遷移は禁制遷移となり、 $S^* \rightarrow S_0$ 遷移は許容遷移となるからである。ところが近年、 $T^*$ から基底状態に戻る際に放出されるエネルギー（以下、「三重項励起エネルギー」と言う）を発光に変換できる発光素子が相次いで発表され、その発光効率の高さが注目されている（例えば、非特許文献3参照）。

#### 【0008】

非特許文献3ではイリジウムを中心金属とする金属錯体（以下、「イリジウム錯体」と記す。）を発光物質として用いており、第3遷移系列元素を中心金属として導入していることが特徴であると言える。これらは、室温で励起三重項状態を発光に変換できる材料（以下、「三重項発光材料」と言う。）である。非特許文献3に示されるとおり、三重項励起エネルギーを発光に変換できる有機化合物を用いた発光素子は、従来よりも高い内部量子効率を達成できる。そして、内部量子効率が高くなれば、発光効率（ $\text{lm/W}$ ）も向上する。

#### 【0009】

しかしながら、非特許文献3の報告によると、初期輝度を $500 \text{ cd/m}^2$ に設定した定電流駆動時の輝度の半減期は170時間程度であり、三重項発光材料を用いた発光素子は素子寿命に問題がある。一方、一重項発光材料を用いた発光素子の場合、初期輝度を $500 \text{ cd/m}^2$ に設定した定電流駆動時の輝度の半減期は数千時間から一万時間にも及び、素子寿命の点では実用的な域に達していると言ってもよい。

#### 【0010】

以上のことから、三重項発光材料を用いた発光素子においては、長時間駆動可能な素子が望まれている。それにより、発光効率が高い上に、素子寿命の長い発光素子が得られるためである。

【非特許文献1】C. W. タン、外1名、アプライド フィジックス レターズ、vol. 51、No. 12、913-915（1987）

【非特許文献2】筒井哲夫、「応用物理学会 有機分子・バイオエレクトロニクス分科会・第3回講習会テキスト」、P. 31（1993）

【非特許文献3】テツオ ツツイ、外8名、ジャパニーズ ジャーナル オブ アプライド フィジックス、vol. 38、L1502-L1504（1999）

#### 【発明の開示】

##### 【発明が解決しようとする課題】

#### 【0011】

本発明は、燐光を発光することのできる物質を提供することを課題とする。また、本発明は、色度の良い発光素子を提供することを課題とする。

##### 【課題を解決するための手段】

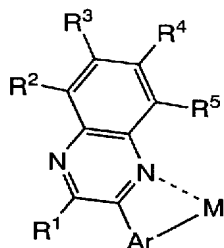
#### 【0012】

本発明者は鋭意研究を重ねた結果、一般式（1）、（2）、（12）、（13）のいずれかで表される構造を含む有機金属錯体、または一般式（3）、（4）、（14）、（15）のいずれかで表される有機金属錯体が、燐光を発光できることを見出した。

#### 【0013】

本発明の一は、一般式（1）で表される構造を含む有機金属錯体である。

#### 【0014】



(1)

## 【0 0 1 5】

一般式(1)において、 $R^1 \sim R^5$ は、それぞれ、水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。またArはアリール基または複素環基を表し、特に電子吸引性置換基を有するアリール基または電子吸引性置換基を有する複素環基であることが好ましい。また、Mは第9族元素または第10族元素を表す。

## 【0 0 1 6】

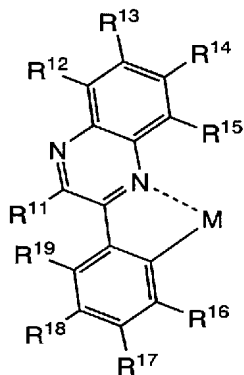
Arが電子吸引性置換基を有する基であることによって、発光強度のより大きな燐光を発光する有機金属錯体を得ることができる。

## 【0 0 1 7】

本発明の一は、一般式(2)で表される構造を含む有機金属錯体である。

## 【0 0 1 8】

## 【化 0 2】



(2)

## 【0 0 1 9】

一般式(2)において、 $R^{11} \sim R^{15}$ は、それぞれ、水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また、 $R^{16} \sim R^{19}$ は、それぞれ、水素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基、電子吸引性置換基のいずれかを表し、少なくとも一は電子吸引性置換基であることが好ましい。また、Mは第9族元素または第10族元素を表す。

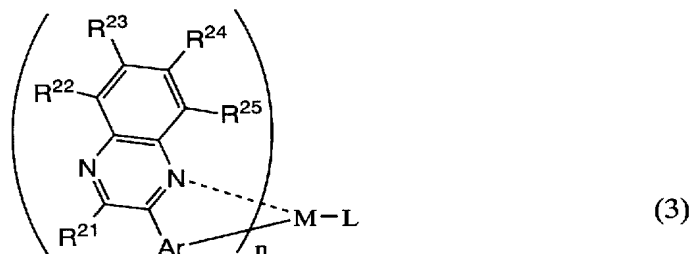
## 【0 0 2 0】

$R^{16} \sim R^{19}$ のいずれかが電子吸引性置換基を有する基であることによって、発光強度のより大きな燐光を発光する有機金属錯体を得ることができる。

## 【0 0 2 1】

本発明の一は、一般式(3)で表される有機金属錯体である。

## 【0 0 2 2】



## 【0 0 2 3】

一般式(3)において、 $R^{21} \sim R^{25}$ は、それぞれ、水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。またArはアリール基または複素環基を表し、特に電子吸引性置換基を有するアリール基または電子吸引性置換基を有する複素環基であることが好ましい。また、Mは第9族元素または第10族元素を表す。Mが第9族元素のときは $n=2$ 、Mが第10族元素のときは $n=1$ である。またLは、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の配位子、またはカルボキシル基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、のいずれかを表す。

## 【0 0 2 4】

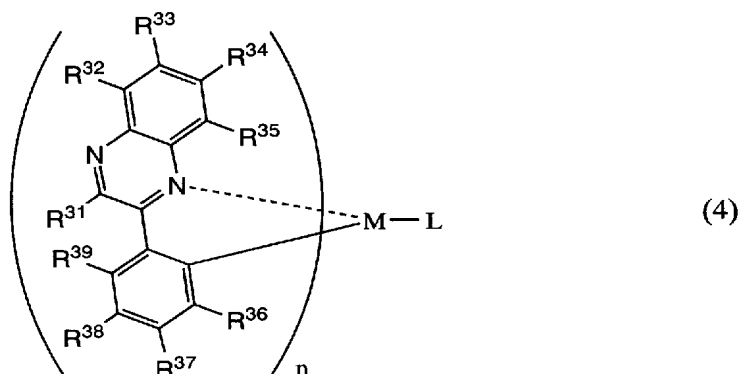
Arが電子吸引性置換基を有する基であることによって、発光強度のより大きな燐光を発光する有機金属錯体を得ることができる。

## 【0 0 2 5】

本発明の一は、一般式(4)で表される有機金属錯体である。

## 【0 0 2 6】

## 【化 0 4】



## 【0 0 2 7】

式(4)において、 $R^{31} \sim R^{35}$ は、それぞれ、水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。また $R^{36} \sim R^{39}$ は、それぞれ、水素、アシル基、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、複素環基、電子吸引性置換基のいずれかを表し、少なくとも一は電子吸引性置換基であることが好ましい。また、Mは第9族元素または第10族元素を表し、前記Mが第9族元素の場合は $n=2$ 、第10族元素の場合は $n=1$ となる。またLは、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の配位子、またはカルボキシル基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、のいずれかを表す。

## 【0 0 2 8】

$R^{36} \sim R^{39}$ のいずれかが電子吸引性置換基を有する基であることによって、発光強度のより大きな燐光を発光する有機金属錯体を得ることができる。

## 【0 0 2 9】

一般式（１）若しくは一般式（２）で表される構造を含む有機金属錯体、または一般式（３）若しくは一般式（４）で表される有機金属錯体において、電子吸引性置換基は、ハロゲン基、ハロアルキル基、シアノ基のいずれかであることが好ましい。これにより、有機金属錯体の色度及び量子効率が向上する。また、ハロゲン基の中でも特にフルオロ基が好ましく、ハロアルキル基の中でも特にトリフルオロメチル基が好ましい。これにより、電子をトラップする効率もよくなる。

【００３０】

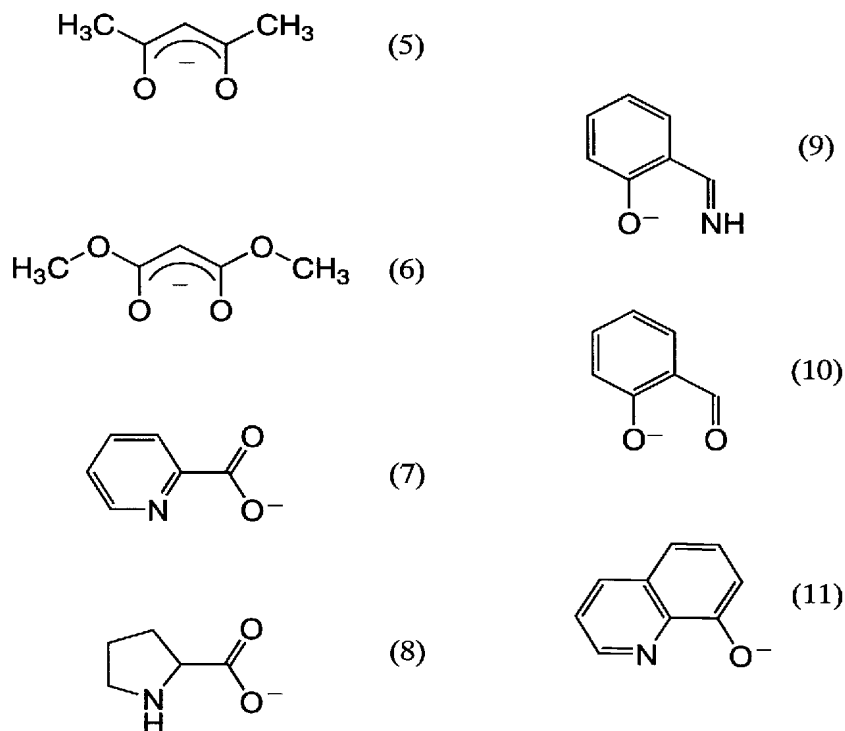
一般式（３）若しくは一般式（４）で表される有機金属錯体において、中心金属Mは、重い金属が好ましく、特にイリジウム又は白金であることが好ましい。これによって、重原子効果を得ることができる。

【００３１】

一般式（３）若しくは一般式（４）で表される有機金属錯体において、Lは、構造式（５）～（１１）で表されるモノアニオン性の配位子であることが特に好ましい。（５）～（１１）で表されるモノアニオン性のキレート配位子は、配位能力が高く、また、安価に入手することができるため、有効である。

【００３２】

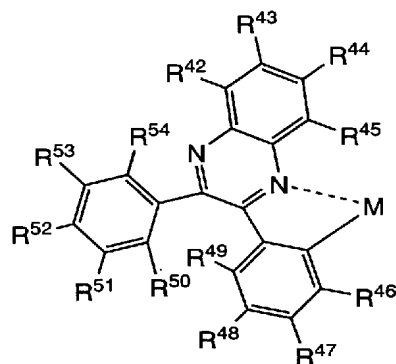
【化０５】



【００３３】

本発明の一は、一般式（１２）で表される構造を含む有機金属錯体である。

【００３４】



(12)

## 【0 0 3 5】

一般式 (12) において、R<sup>42</sup>～R<sup>54</sup>は、それぞれ、水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基、電子吸引性置換基のいずれかを表す。Mは第9族元素または第10族元素を表す。

## 【0 0 3 6】

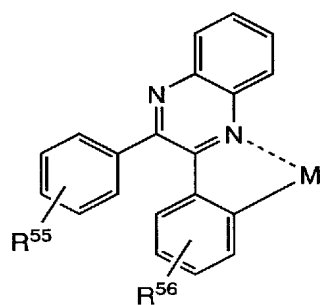
R<sup>46</sup>～R<sup>49</sup>の中で少なくとも一は、電子吸引性置換基であることが好ましい。これによって、発光強度のより大きな燐光を発光する有機金属錯体を得ることができる。

## 【0 0 3 7】

本発明の一は、一般式 (13) で表される構造を含む有機金属錯体である。

## 【0 0 3 8】

## 【化 0 7】



(13)

## 【0 0 3 9】

一般式 (13) において、R<sup>55</sup>、R<sup>56</sup>は、それぞれ、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基、電子吸引性置換基のいずれかを表す。また、Mは第9族元素または第10族元素を表す。

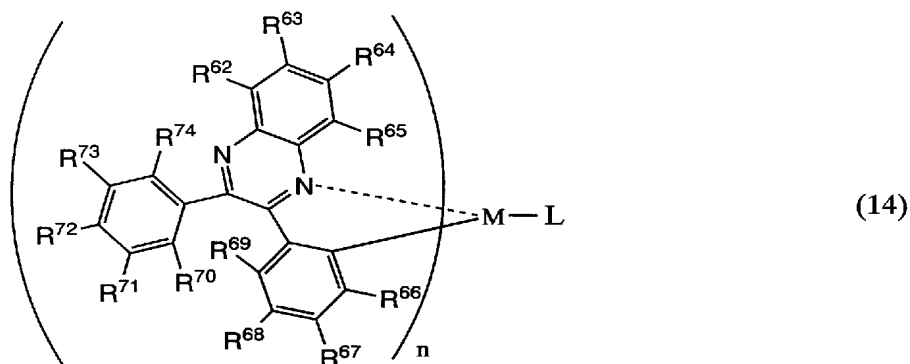
## 【0 0 4 0】

ここで、R<sup>56</sup>は電子吸引性置換基であることが好ましい。これによって、発光強度のより大きな燐光を発光する有機金属錯体を得ることができる。

## 【0 0 4 1】

本発明の一は、一般式 (14) で表される有機金属錯体である。

## 【0 0 4 2】



## 【0 0 4 3】

一般式(14)において、 $R^{62} \sim R^{74}$ は、それぞれ、水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基、電子吸引性置換基のいずれかを表す。また、Mは第9族元素または第10族元素を表し、Mが第9族元素のときは $n=2$ 、Mが第10族元素のときは $n=1$ となる。またLは、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の配位子、またはカルボキシル基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、のいずれかを表す。

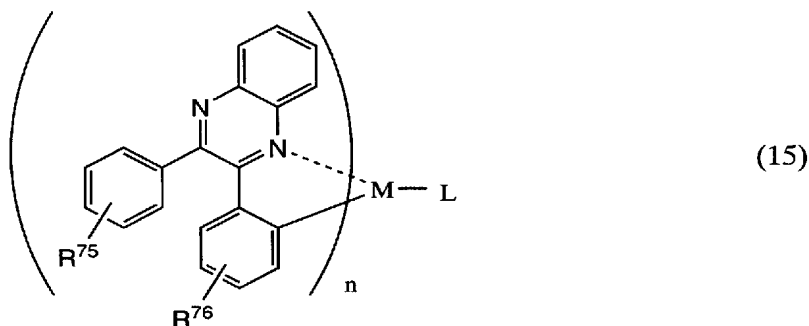
## 【0 0 4 4】

ここで、 $R^{66} \sim R^{69}$ の少なくとも一は、電子吸引性置換基であることが好ましい。これによって、発光強度のより大きな燐光を発光する有機金属錯体を得ることができる。

## 【0 0 4 5】

本発明の一は、一般式(15)で表される有機金属錯体である。

## 【0 0 4 6】



## 【0 0 4 7】

式(15)において、 $R^{75}$ 、 $R^{76}$ は、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基、電子吸引性置換基のいずれかを表す。また、Mは第9族元素または第10族元素を表し、Mが第9族元素のときは $n=2$ 、Mが第10族元素のときは $n=1$ となる。またLは、ベータジケトン構造を有するモノアニオン性の配位子、またはカルボキシル基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、またはフェノール性水酸基を有するモノアニオン性の二座キレート配位子、のいずれかを表す。

## 【0 0 4 8】

ここで、 $R^{76}$ は電子吸引性置換基であることが好ましい。これによって、発光強度のより大きな燐光を発光する有機金属錯体を得ることができる。

## 【0 0 4 9】

一般式（１２）若しくは一般式（１３）で表される構造を含む有機金属錯体、または一般式（１４）若しくは一般式（１５）で表される有機金属錯体において、電子吸引性置換基は、ハロゲン基、ハロアルキル基、シアノ基のいずれかであることが好ましい。これにより、有機金属錯体の色度及び量子効率が向上する。また、ハロゲン基の中でも特にフルオロ基が好ましく、ハロアルキル基の中でも特にトリフルオロメチル基が好ましい。これにより、電子をトラップする効率もよくなる。

【００５０】

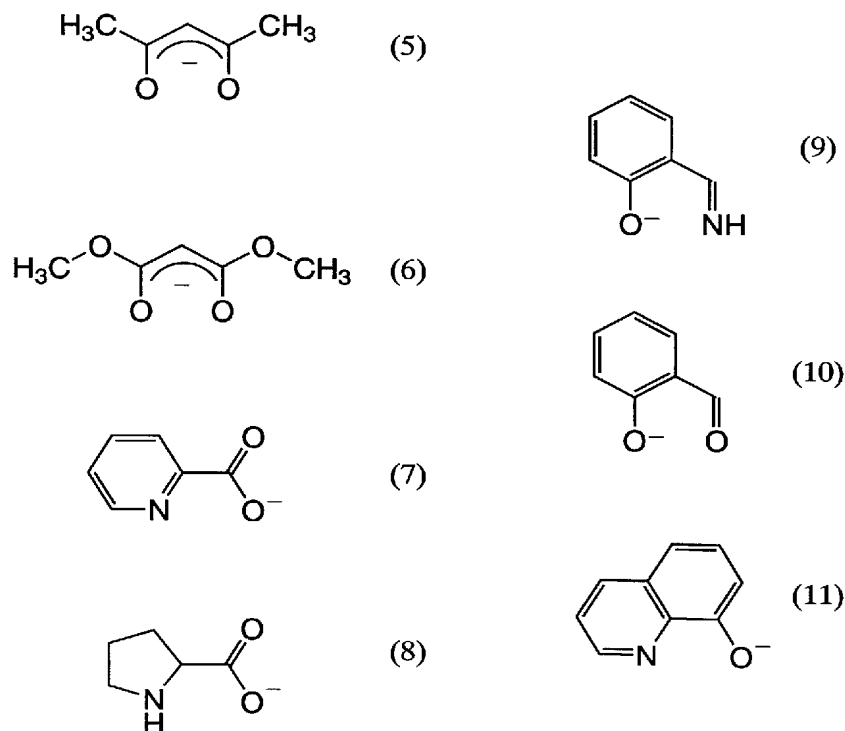
一般式（１４）若しくは一般式（１５）で表される有機金属錯体において、中心金属Mは、重い金属が好ましく、特にイリジウム又は白金であることが好ましい。これによって、重原子効果を得ることができる。

【００５１】

一般式（１４）若しくは一般式（１５）で表される有機金属錯体において、Lは、構造式（５）～（１１）で表されるモノアニオン性の配位子であることが特に好ましい。（５）～（１１）で表されるモノアニオン性のキレート配位子は、配位能力が高く、また、安価に入手することができるため、有効である。

【００５２】

【化１０】



【００５３】

本発明の一は、一般式（１）、（２）、（１２）、（１３）のいずれかで表される構造を含む有機金属錯体、または一般式（３）、（４）、（１４）、（１５）のいずれかで表される有機金属錯体を含む発光素子である。

【００５４】

本発明の一は、一般式（１）、（２）、（１２）、（１３）のいずれかで表される構造を含む有機金属錯体、または一般式（３）、（４）、（１４）、（１５）のいずれかで表される有機金属錯体を含む発光素子を含む発光装置である。

【発明の効果】

【００５５】

本発明によって、燐光を発光することができる有機金属錯体を得ることができる。また、本発明によって、発光物質または増感剤として用いることのできる有機金属錯体を得る



ことができる。

【００５６】

本発明の有機金属錯体を発光物質として用いることによって、色度の良い赤色系の発光を呈することのできる発光素子を得ることができる。また、本発明の有機金属錯体を増感剤として用いることによって、効率よく発光することのできる発光素子を得ることが出来る。また、本発明の有機金属錯体の中でも特に電子吸引性置換基を導入した有機金属錯体を用いることによって、再結合効率のよい発光素子を作製することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【００５７】

以下、本発明の一態様について説明する。但し、本発明は多くの異なる態様で実施することが可能であり、本発明の趣旨及びその範囲から逸脱することなくその形態及び詳細を様々に変更し得ることは当業者であれば容易に理解される。従って、本形態の記載内容に限定して解釈されるものではない。

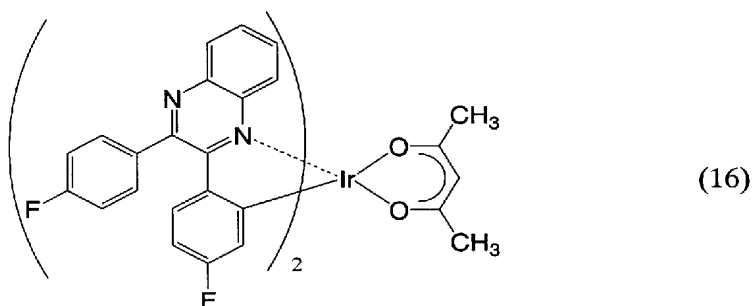
【００５８】

（実施の形態１）

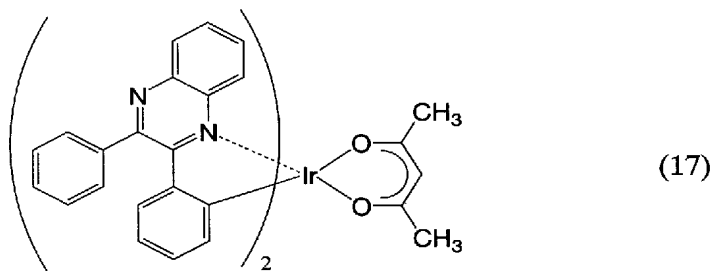
本発明の一態様としては、構造式（１６）～構造式（５５）で表される有機金属錯体が挙げられる。但し、本発明は、ここに記載したものには限定されない。

【００５９】

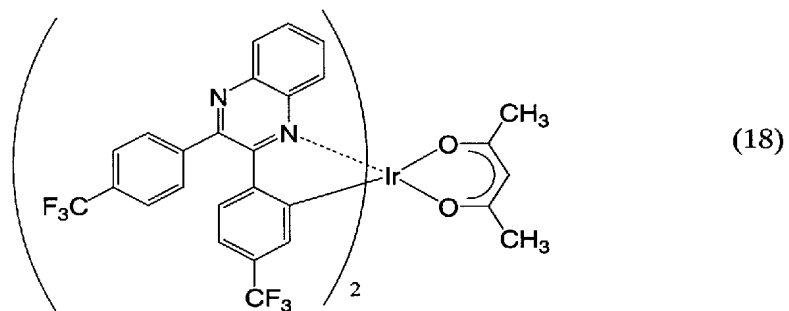
【化１１】



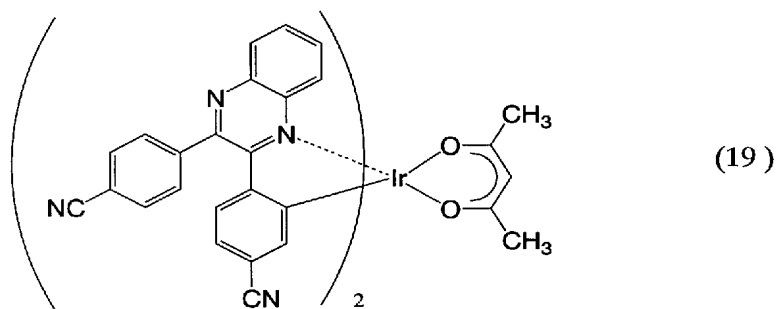
【化１２】



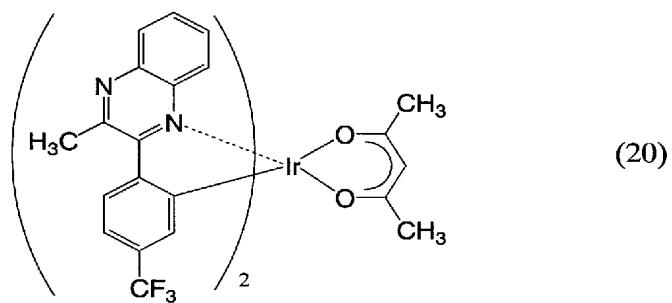
【化 1 3】



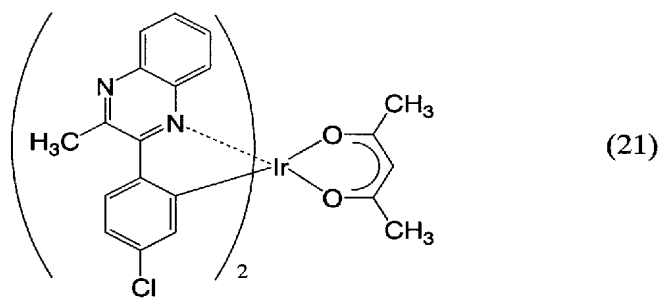
【化 1 4】



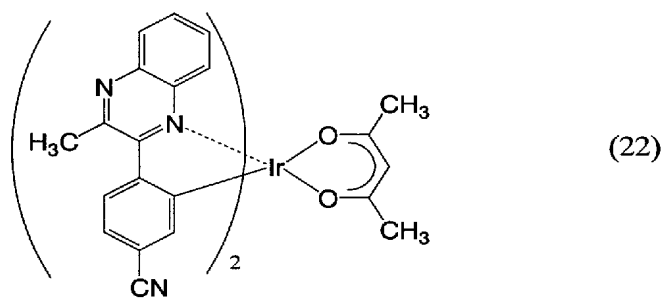
【化 1 5】



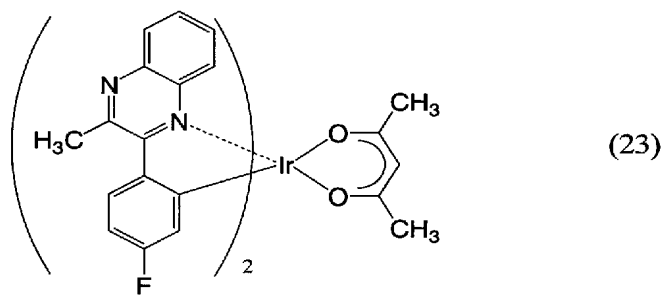
【化 1 6】



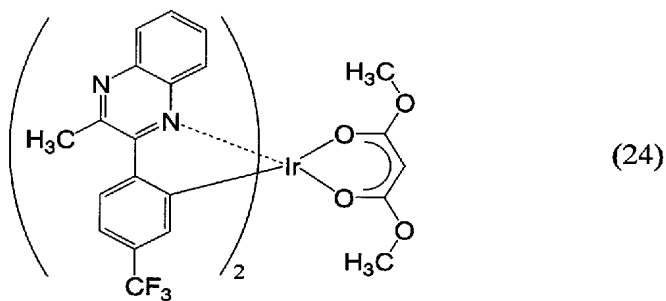
【化 1 7】



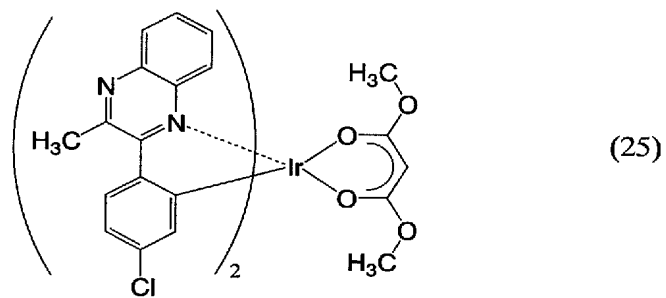
【化 1 8】



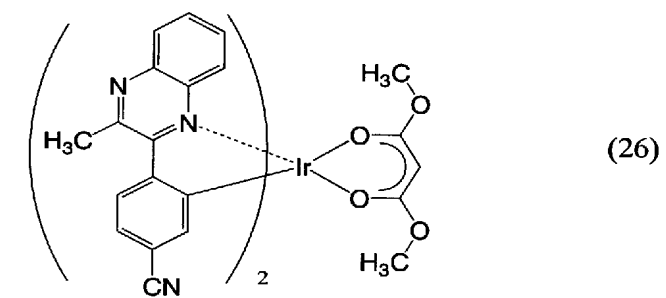
【化 1 9】



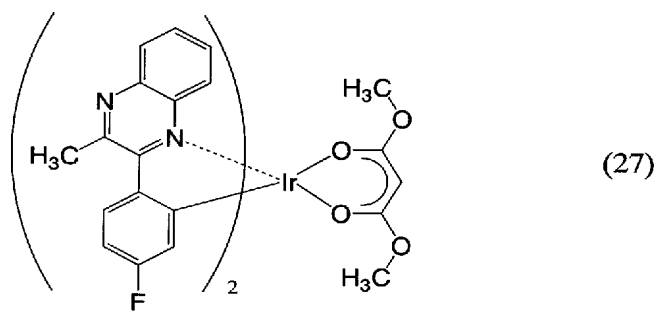
【化 2 0】



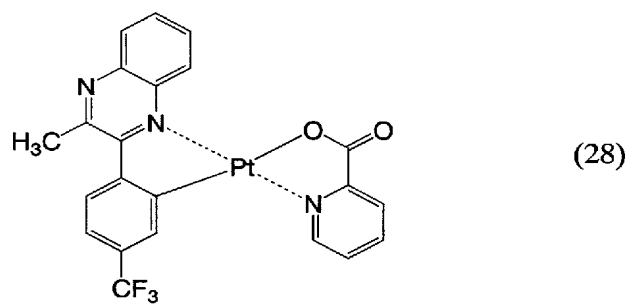
【化 2 1】



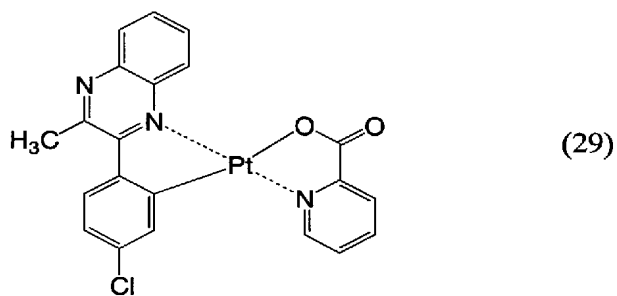
【化 2 2】



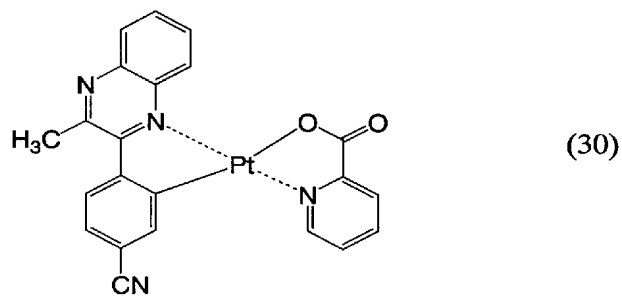
【化 2 3】



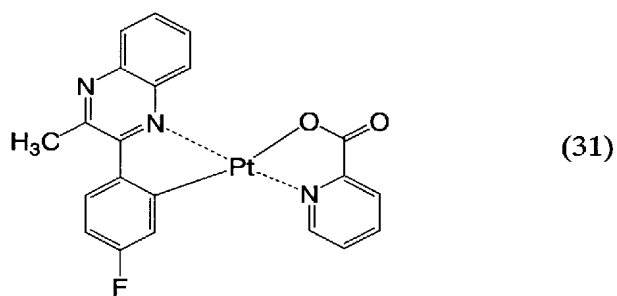
【化 2 4】



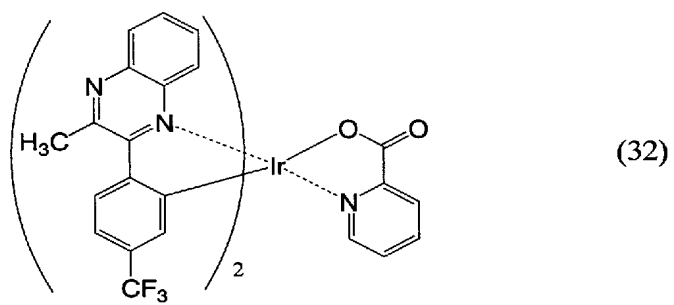
【化 2 5】



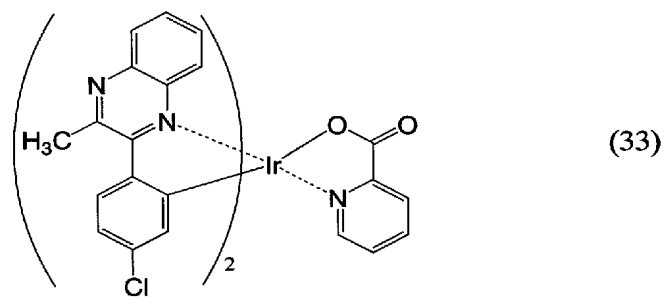
【化 2 6】



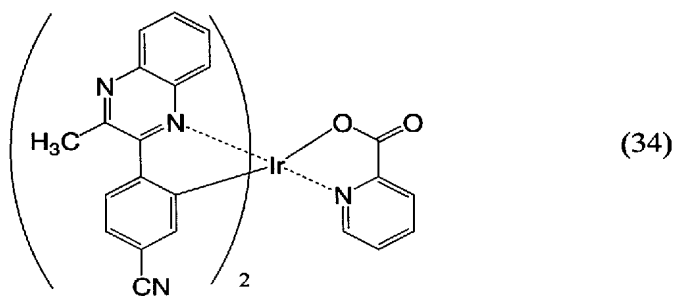
【化 2 7】



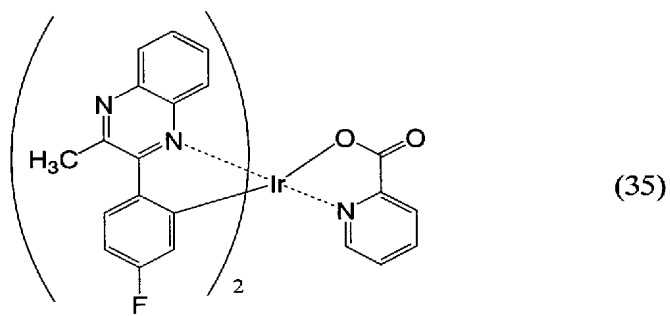
【化 2 8】



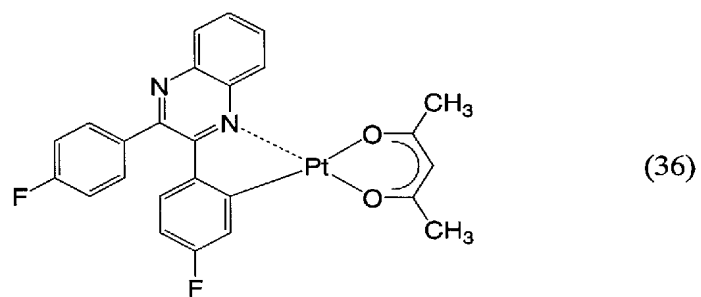
【化 2 9】



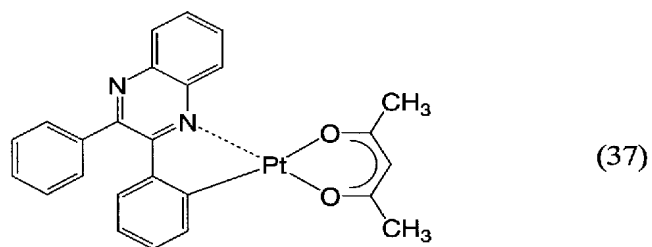
【化 3 0】



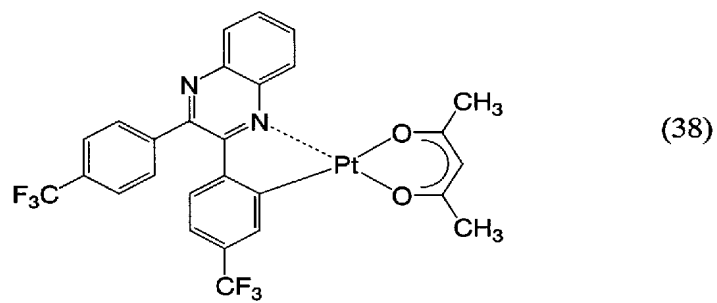
【化 3 1】



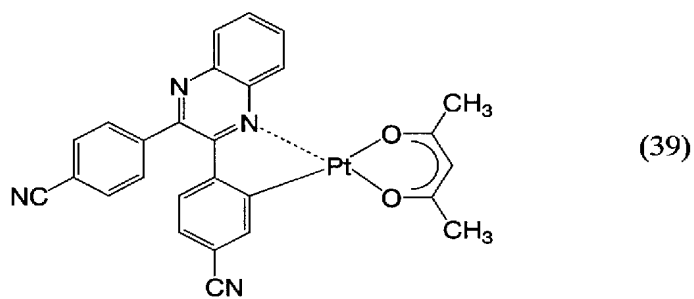
【化 3 2】



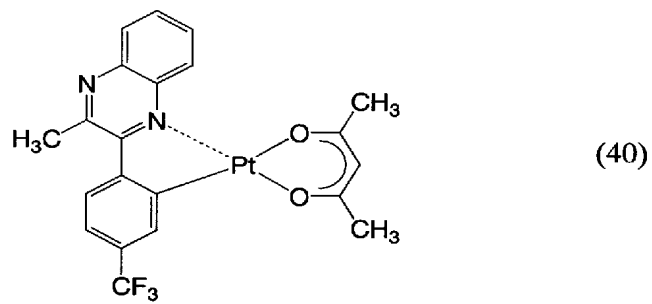
【化 3 3】



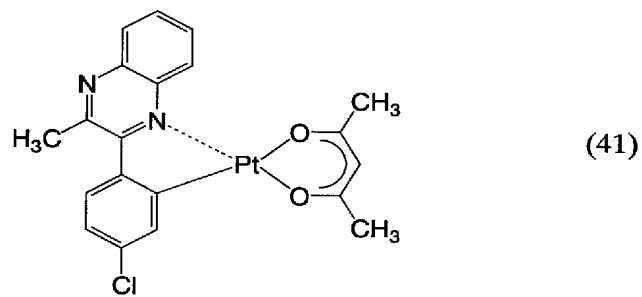
【化 3 4】



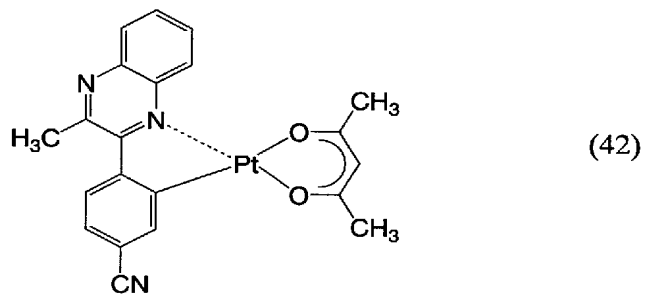
【化 3 5】



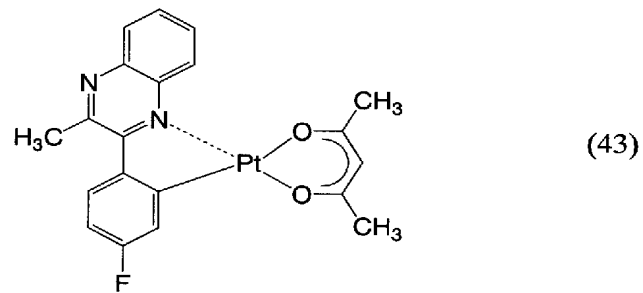
【化 3 6】



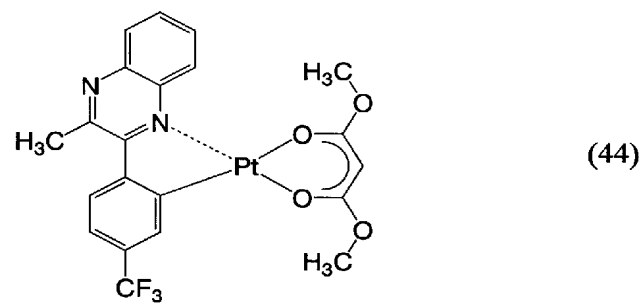
【化 3 7】



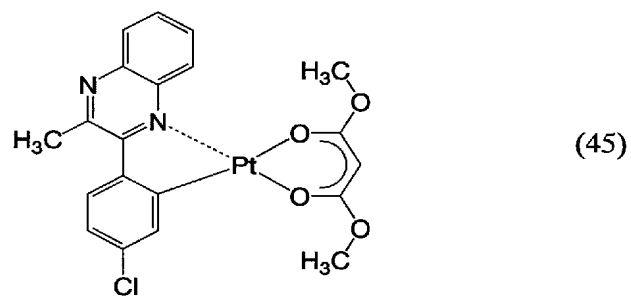
【化 3 8】



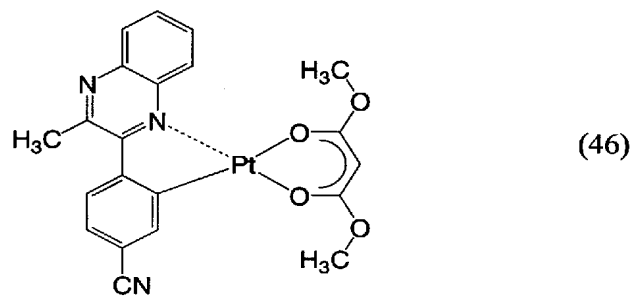
【化 3 9】



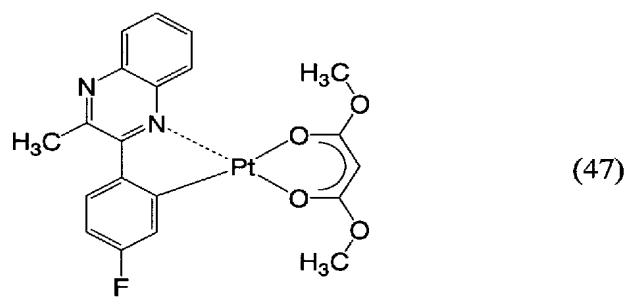
【化 4 0】



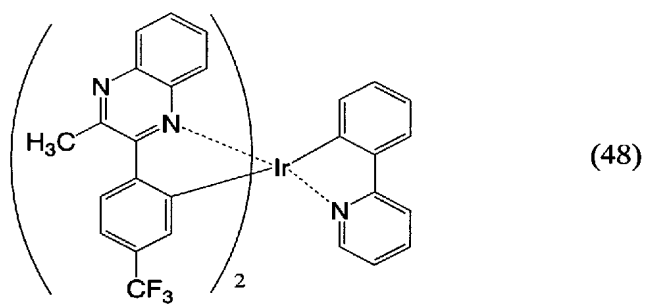
【化 4 1】



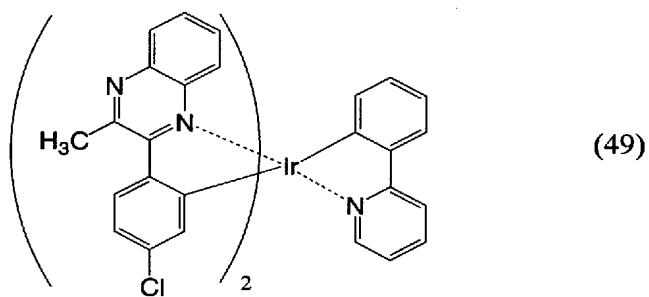
【化 4 2】



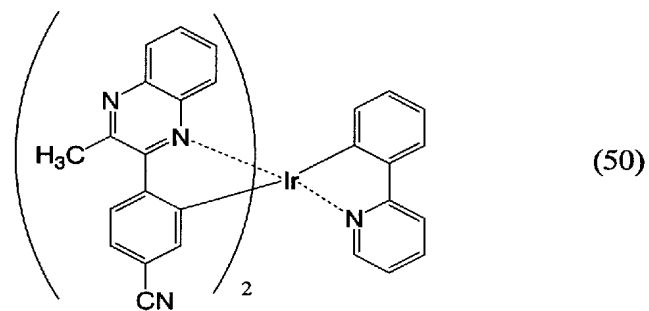
【化 4 3】



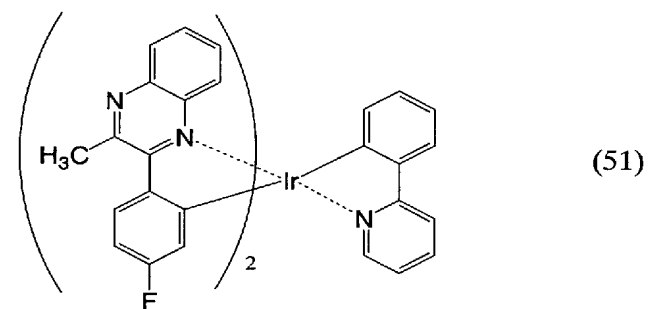
【化 4 4】



【化 4 5】

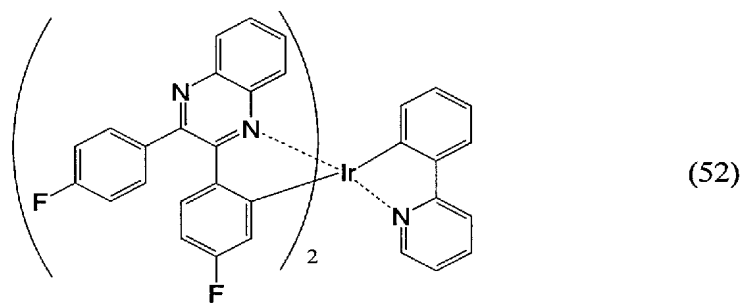


【化 4 6】

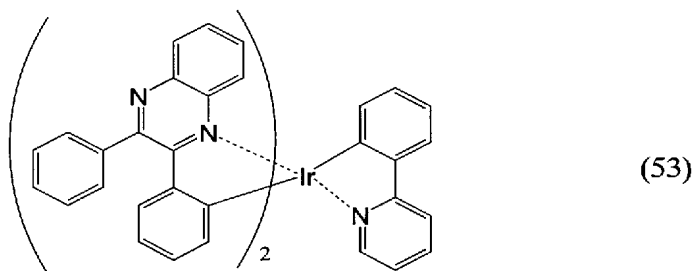




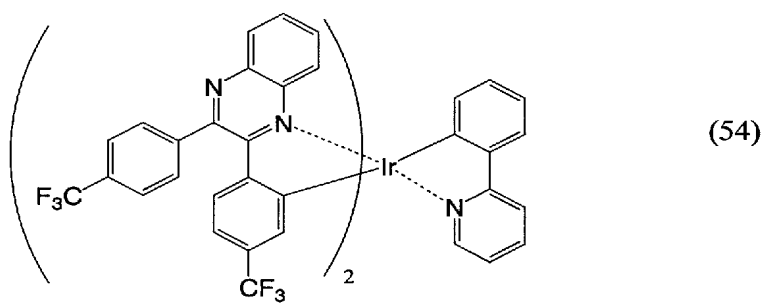
【化 4 7】



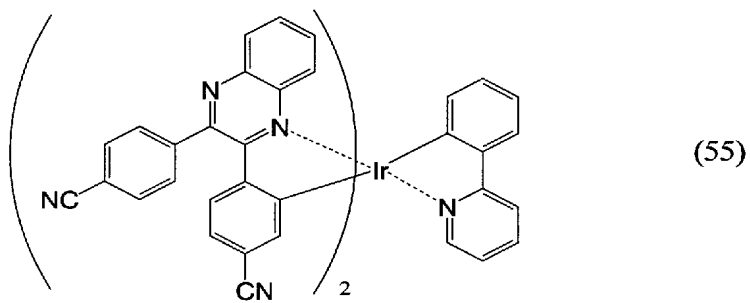
【化 4 8】



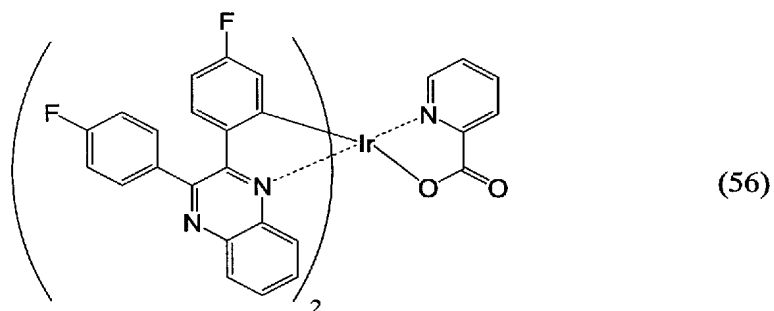
【化 4 9】



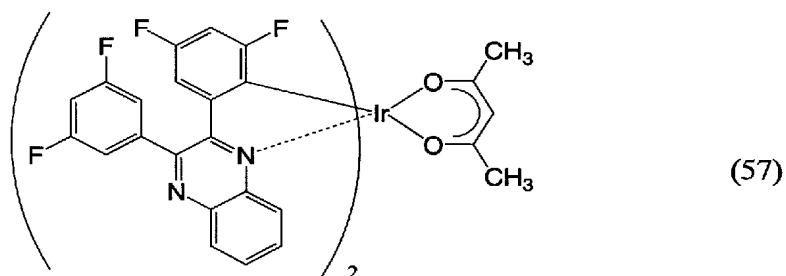
【化 5 0】



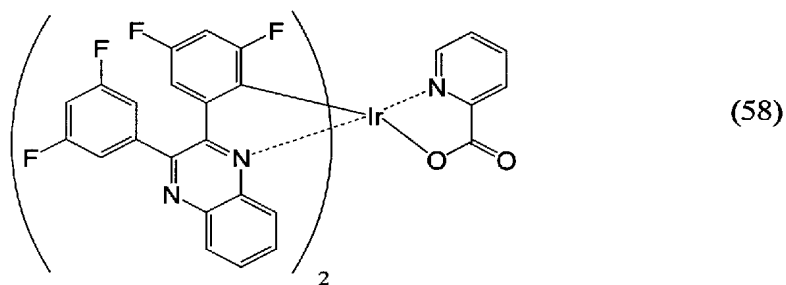
【化 5 1】



【化 5 2】



【化 5 3】



【0060】

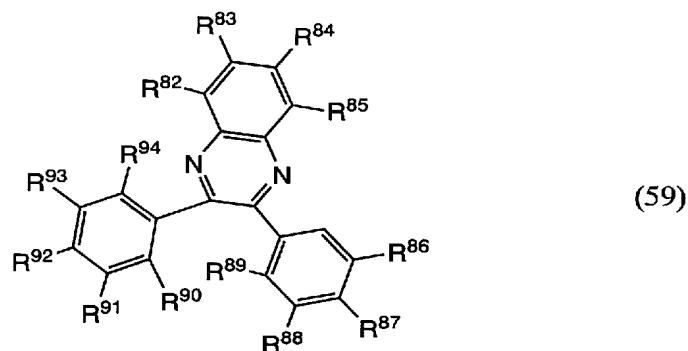
以上に述べた本発明の有機金属錯体は、燐光を発光することができる。また、本発明の有機金属錯体は、発光材料として発光素子に適用することができる。また、本発明の有機金属錯体は、光増感剤として発光素子に適用することができる。

【0061】

(実施の形態2)

本発明の有機金属錯体は、配位子をオルトメタル化反応させることによって得ることができる。例えば、下記一般式(59)で表される配位子を有する有機金属錯体は、下記一般式(59)で表される配位子をオルトメタル化反応させることにより得られる。本形態では、この一般式(59)で表される配位子を用い、前記一般式(14)で表される有機金属錯体を合成する手法について説明する。

【0062】



【 0 0 6 3 】

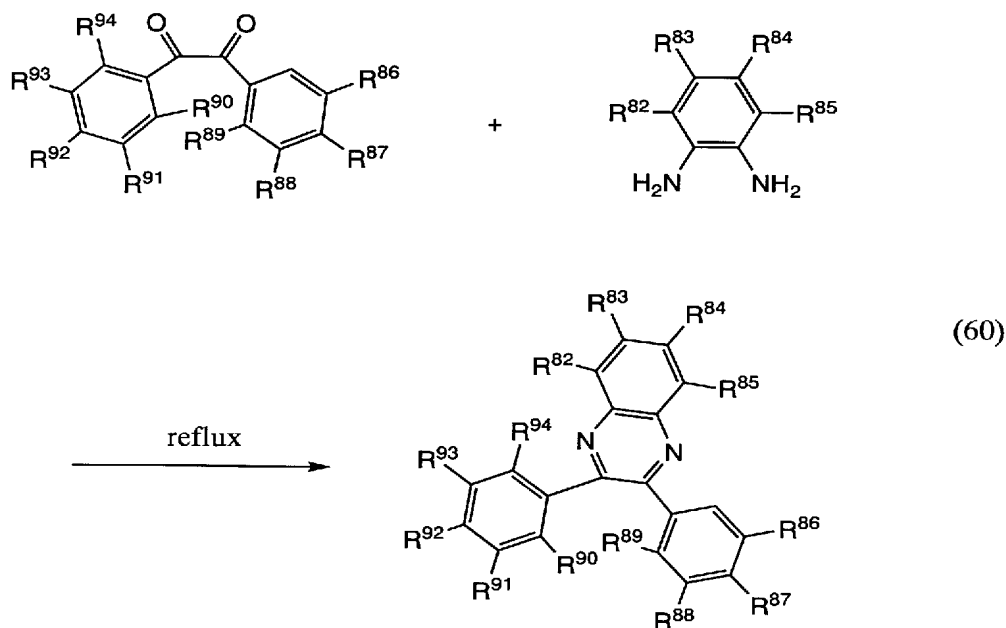
一般式 ( 5 9 ) において、 $R^{82} \sim R^{94}$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基、電子吸引性置換基のいずれかを表す。

【 0 0 6 4 】

なお、上記一般式 ( 5 9 ) で表される配位子は、例えば、下記合成スキーム ( 5 9 ) のようにして合成することができる。また、本発明で用いる有機金属錯体における他の配位子についても、同様の手法で合成可能である。

【 0 0 6 5 】

【化 5 5】



【 0 0 6 6 】

一般式 ( 6 0 ) において、 $R^{82} \sim R^{94}$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基、電子吸引性置換基のいずれかを表す。

【 0 0 6 7 】

このようにして得られた一般式 ( 5 9 ) の配位子を用いて、本発明の有機金属錯体を合成する。この時の反応 ( オルトメタル化反応 ) としては、以下に示すような合成方法を用いればよい。

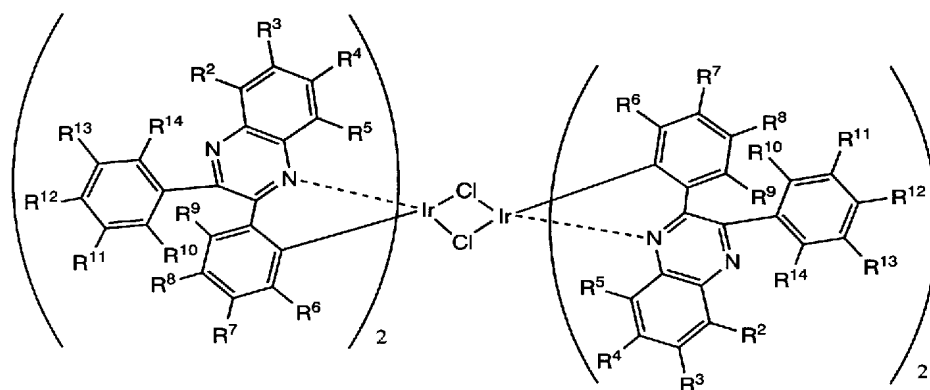
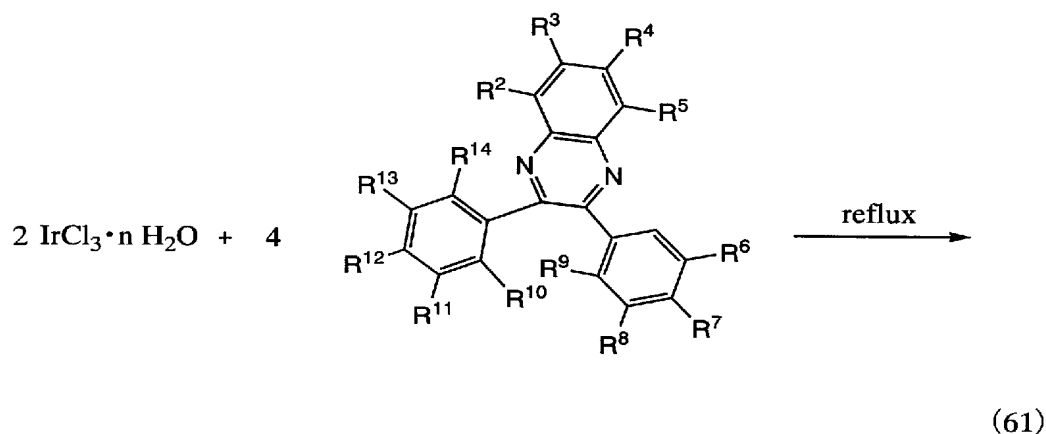
【 0 0 6 8 】

イリジウムを中心金属として本発明で用いる有機金属錯体を合成する場合は、中心金属

原料として塩化イリジウムの水和物と、前記一般式（５９）の配位子と混合して窒素雰囲気下にて還流することにより、まず塩素架橋の複核錯体を合成する（下記合成スキーム（６１））。次に、得られた前記複核錯体と配位子Ｌとを混合して窒素雰囲気下にて還流することにより、塩素架橋を配位子Ｌで切断し、本発明で用いる有機金属錯体を得る（下記合成スキーム（６２））。ここで、配位子Ｌについて特に限定は無いが、構造式（５）～（１１）のいずれかで表される配位子が好ましい。

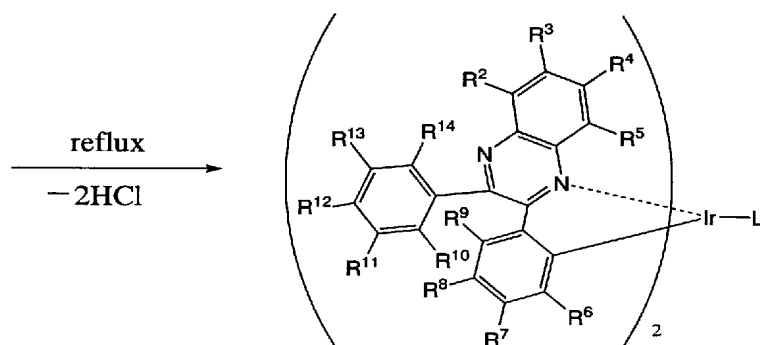
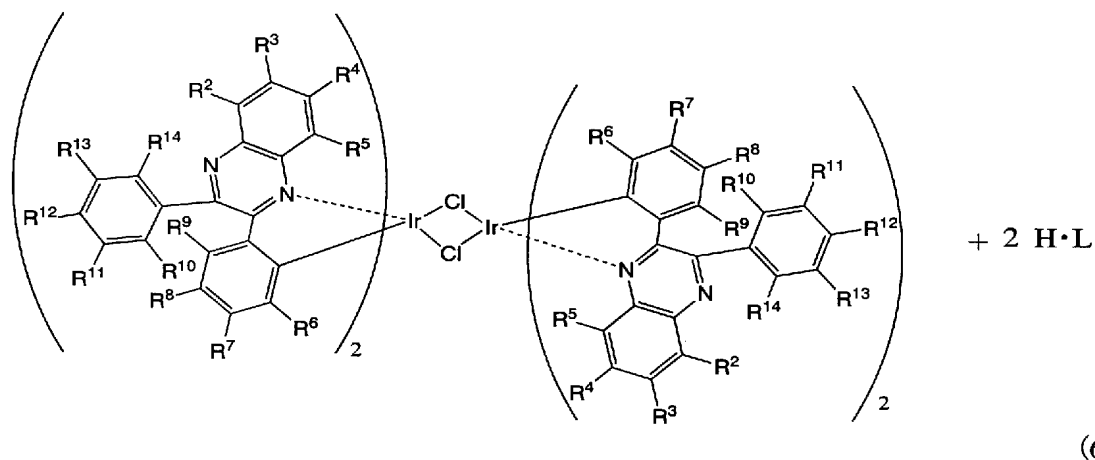
【００６９】

【化５６】



一般式（６１）において、 $R^{82} \sim R^{94}$ は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基、電子吸引性置換基のいずれかを表す。

【００７０】



一般式 (62) において、 $R^{82} \sim R^{94}$  は水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基、電子吸引性置換基のいずれかを表す。また L は、モノアニオン性の配位子を表す。

#### 【0071】

なお、本発明で用いる有機金属錯体の合成法は、上記に示す合成方法に限定されるものではない。

#### 【0072】

(実施の形態 3)

本発明の有機金属錯体を発光物質として用いた発光素子の態様について、図 1 を用いて説明する。

#### 【0073】

図 1 には、第 1 の電極 151 と第 2 の電極 152 との間に発光層 163 を有する発光素子が表されている。そして、発光層 163 には、一般式 (1)、(2)、(12)、(13) のいずれかで表される構造を含む本発明の有機金属錯体、または一般式 (3)、(4)、(14)、(15) のいずれかで表される本発明の有機金属錯体が含まれている。

#### 【0074】

このような発光素子において、第 1 の電極 151 から注入された正孔と、第 2 の電極 152 から注入された電子とは、発光層 163 において再結合し、有機金属錯体を励起状態にする。そして、励起状態の本発明の有機金属錯体は基底状態に戻るときに発光する。このように、本発明の有機金属錯体は発光物質として機能する。なお、本形態の発光素子において、第 1 の電極 151 は陽極として機能し、第 2 の電極 152 は陰極として機能する。

#### 【0075】

ここで、発光層 163 について特に限定はないが、本発明の有機金属錯体が、本発明の有機金属錯体の有するエネルギーギャップよりも大きいエネルギーギャップを有する物質

からなる層中に、分散して含まれた層であることが好ましい。これによって、本発明の有機金属錯体からの発光が、濃度に起因して消光してしまうことを防ぐことができる。なお、エネルギーギャップとはLUMO準位とHOMO準位との間のエネルギーギャップを言う。

#### 【0076】

本発明の有機金属錯体を分散状態にするために用いる物質について特に限定はないが、2, 3-ビス(4-ジフェニルアミノフェニル)キノキサリン(略称:TPAQn)、4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(略称: $\alpha$ -NPD)のようなアリアルアミン骨格を有する化合物の他、4, 4'-ビス(N-カルバゾリル)ビフェニル(略称:CBP)、4, 4', 4'-トリス(N-カルバゾリル)トリフェニルアミン(略称:TC TA)等のカルバゾール誘導体や、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)ピリジナト]亜鉛(略称:Znp<sub>2</sub>)、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾラト]亜鉛(略称:ZnBOX)、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(略称:Alq<sub>3</sub>)等の金属錯体等が好ましい。

#### 【0077】

なお、有機金属錯体の中でも特にハロゲン基、ハロアルキル基、シアノ基等の電子吸引性置換基を有するものを発光物質として用いた発光素子とすることが好ましい。これによって色度及び量子効率のよい発光素子を得ることができる。

#### 【0078】

また、ハロゲン基の中でも特にフルオロ基、ハロアルキル基の中でも特にトリフルオロメチル基が好ましい。これらの置換基を有する有機金属錯体を発光物質として用いることによって、再結合効率の高い発光素子を得ることができる。

#### 【0079】

また、第1の電極151について特に限定はないが、本形態のように、陽極として機能するときは、仕事関数の大きい物質で形成されていることが好ましい。具体的には、インジウム錫酸化物(ITO)、または酸化珪素を含むインジウム錫酸化物、2~20%の酸化亜鉛を含む酸化インジウムの他、金(Au)、白金(Pt)、ニッケル(Ni)、タンゲステン(W)、クロム(Cr)、モリブデン(Mo)、鉄(Fe)、コバルト(Co)、銅(Cu)、パラジウム(Pd)等を用いることができる。なお、第1の電極151は、例えばスパッタ法や蒸着法等を用いて形成することができる。

#### 【0080】

また、第2の電極152について特に限定はないが、本形態のように、陰極として機能するときは、仕事関数の小さい物質で形成されていることが好ましい。具体的には、リチウム(Li)またはマグネシウム等のアルカリ金属またはアルカリ土類金属等を含んだアルミニウム等を用いることができる。なお、第2の電極152は、例えばスパッタ法や蒸着法等を用いて形成することができる。

#### 【0081】

なお、発光した光を外部に取り出すために、第1の電極151と第2の電極のいずれか一または両方は、インジウムスズ酸化物等のから成る電極、または可視光を透過出来るように数~数十nmの厚さで形成された電極であることが好ましい。

#### 【0082】

また、第1の電極151と発光層163との間には、図1に示すように、正孔輸送層162を有していてもよい。ここで、正孔輸送層とは、第1の電極151から注入された正孔を発光層163へ輸送する機能を有する層である。このように、正孔輸送層162を設け、第1の電極151と発光層163とを離すことによって、発光が金属に起因して消光することを防ぐことができる。

#### 【0083】

なお、正孔輸送層162について、特に限定はなく、4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ービフェニル(略称: $\alpha$ -NPD)や4, 4'-ビス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]ービフェニル(略称:TPD)や

4, 4', 4''-トリス(N, N-ジフェニル-アミノ)-トリフェニルアミン(略称: TDATA)、4, 4', 4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニル-アミノ]-トリフェニルアミン(略称: MTDATA)などの芳香族アミン系(即ち、ベンゼン環-窒素の結合を有する)の化合物等によって形成されたものを用いることができる。

#### 【0084】

また、正孔輸送層162は、以上に述べた物質から成る層を二以上組み合わせて形成した多層構造の層であってもよい。

#### 【0085】

また、第2の電極152と発光層163との間には、図1に示すように、電子輸送層164を有していてもよい。ここで、電子輸送層とは、第2の電極152から注入された電子を発光層163へ輸送する機能を有する層である。このように、電子輸送層164を設け、第2の電極152と発光層163とを離すことによって、発光が金属に起因して消光することを防ぐことができる。

#### 【0086】

なお、電子輸送層164について特に限定はなく、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(略称: Alq<sub>3</sub>)、トリス(5-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(略称: Almq<sub>3</sub>)、ビス(10-ヒドロキシベンゾ[h]-キノリナト)ベリリウム(略称: BeBq<sub>2</sub>)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)-4-フェニルフェノラト-アルミニウム(略称: BALq)など、キノリン骨格またはベンゾキノリン骨格を有する金属錯体等によって形成されたものを用いることができる。この他、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)-ベンゾオキサゾラト]亜鉛(略称: Zn(BOX)<sub>2</sub>)、ビス[2-(2-ヒドロキシフェニル)-ベンゾチアゾラト]亜鉛(略称: Zn(BTZ)<sub>2</sub>)などのオキサゾール系、チアゾール系配位子を有する金属錯体等によって形成されたものであってもよい。また、2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(略称: PBD)や、1,3-ビス[5-(p-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール-2-イル]ベンゼン(略称: OXD-7)、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-フェニル-5-(4-ビフェニル)-1,2,4-トリアゾール(略称: TAZ)、3-(4-tert-ブチルフェニル)-4-(4-エチルフェニル)-5-(4-ビフェニル)-1,2,4-トリアゾール(略称: p-EtTAZ)、バソフェナントロリン(略称: BPhen)、バソキュプロイン(略称: BCP)等を用いて形成されたものであってもよい。

#### 【0087】

また、電子輸送層164は、以上に述べた物質から成る層を二以上組み合わせて形成した多層構造の層であってもよい。

#### 【0088】

さらに、第1の電極151と正孔輸送層162との間には、図1に示すように、正孔注入層161を有していてもよい。ここで、正孔注入層とは、陽極として機能する電極から正孔輸送層162へ正孔の注入を補助する機能を有する層である。なお、正孔輸送層を特に設けない場合は、陽極として機能する電極と発光層との間に正孔注入層を設け、発光層への正孔の注入を補助してもよい。

#### 【0089】

正孔注入層161について特に限定はなく、モリブデン酸化物(MoO<sub>x</sub>)やバナジウム酸化物(VO<sub>x</sub>)、ルテニウム酸化物(RuO<sub>x</sub>)、タングステン酸化物(WO<sub>x</sub>)、マンガン酸化物(MnO<sub>x</sub>)等の金属酸化物によって形成されたものを用いることができる。この他、フタロシアニン(略称: H<sub>2</sub>Pc)や銅フタロシアニン(CuPC)等のフタロシアニン系の化合物、或いはポリ(エチレンジオキシチオフェン)/ポリ(スチレンスルホン酸)水溶液(PEDOT/ PSS)等の高分子等によっても正孔注入層161を形成することができる。

#### 【0090】

また、第2の電極152と電子輸送層164との間には、図1に示すように、電子注入層165を有していてもよい。ここで、電子注入層とは、陰極として機能する電極から電子輸送層164へ電子の注入を補助する機能を有する層である。なお、電子輸送層を特に設けない場合は、陰極として機能する電極と発光層との間に電子注入層を設け、発光層への電子の注入を補助してもよい。

#### 【0091】

電子注入層165について特に限定はなく、フッ化リチウム(LiF)、フッ化セシウム(CsF)、フッ化カルシウム(CaF<sub>2</sub>)等のようなアルカリ金属又はアルカリ土類金属の化合物を用いて形成されたものを用いることができる。その他、Alq<sub>3</sub>または4,4'-ビス(5-メチルベンズオキサゾール-2-イル)スチルベン(BzOs)等のように電子輸送性の高い物質と、マグネシウムまたはリチウム等のようにアルカリ金属又はアルカリ土類金属とを混合したものも、電子注入層165として用いることができる。

#### 【0092】

以上に述べた本発明の発光素子において、正孔注入層161、正孔輸送層162、発光層163、電子輸送層164、電子注入層165は、それぞれ、蒸着法、またはインクジェット法、または塗布法等、いずれの方法で形成しても構わない。また、第1の電極151または第2の電極152についても、スパッタリング法または蒸着法等、いずれの方法を用いて形成しても構わない。

#### 【0093】

以上に述べたような本発明の発光素子は、本発明の有機金属錯体を用いているため、色度の良い赤色の発光を呈することができる。また、本発明の発光素子は、燐光を発光させることができるため、発光効率が良い。また、キノキサリン誘導体から成る層に本発明の有機金属錯体を分散させた層を含む発光素子は、特に効率良く発光する。

#### 【0094】

(実施の形態4)

本発明の発光素子は、複数の発光層を有するものであってもよい。複数の発光層を設け、それぞれの発光層からの発光を混合することで、例えば白色光の光を得ることができる。本形態では、複数の発光層を有する発光素子の態様について図2、3を用いて説明する。

#### 【0095】

図2において、第1の電極751と第2の電極752との間には、第1の発光層763と第2の発光層765とを有する。第1の発光層763と第2の発光層765との間には、隔壁層764を有することが好ましい。

#### 【0096】

第1の電極751の電位よりも第2の電極752の電位が高くなるように電圧を印加すると、第1の電極751と第2の電極752との間に電流が流れ、第1の発光層763または第2の発光層765または隔壁層764において正孔と電子とが再結合する。生じた励起エネルギーは、隔壁層764を介して第1の発光層763と第2の発光層765の両方に移り、第1の発光層763に含まれた第1の発光物質と第2の発光層765に含まれた発光物質を励起状態にする。そして、励起状態になった第1の発光物質と第2の発光物質とは、それぞれ基底状態に戻るときに発光する。

#### 【0097】

第1の発光層763には、ペリレン、2,5,8,11-テトラ-tert-ブチルペリレン(TBP)、4,4'-ビス[2-ジフェニルビニル]ビフェニル(DPVBi)、4,4'-ビス[2-(N-エチルカルバゾール-3-イル)ビニル]ビフェニル(BCzVBi)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)-4-フェニルフェノラト-アルミニウム(BAlq)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)-クロロガリウム(Gamq<sub>2</sub>Cl)などの蛍光物質や、ビス[2-(3,5-ビス(トリフルオロメチル)フェニル)ピリジナト-N, C<sup>2+</sup>]イリジウム(III)ピコリナート(Ir(CF<sub>3</sub>pp)<sub>2</sub>(pic))、ビス[2-(4,6-ジフルオロフェニル)ピリジナト-N, C<sup>2+</sup>]



イリジウム（I I I）アセチルアセトナート（F I r（a c a c））、ビス〔2-（4，6-ジフルオロフェニル）ピリジナト-N，C<sup>2'</sup>〕イリジウム（I I I）ピコリナート（F I r（p i c））などの燐光物質に代表される発光物質が含まれており、450～510 nmに発光スペクトルのピークを有する発光が得られる。また、第2の発光層765には、本発明の有機金属錯体が発光物質として機能するように含まれており、第2の発光層765からは、580～680 nmに発光スペクトルのピークを有する発光が得られる。そして、第1の発光層763からの発光の発光色と第2の発光層765からの発光の発光色とは、第1の電極751と第2の電極752とのいずれか一若しくは両方を通して外部に射出する。外部に射出したそれぞれの発光は、視覚的に混合され、白色光として視認される。

#### 【0098】

第1の発光層763は、450～510 nmの発光を呈することのできる発光物質が、該発光物質のエネルギーギャップよりも大きなエネルギーギャップを有する物質（第1のホスト）から成る層中に分散した状態で含まれているか、または、450～510 nmの発光を呈することのできる発光物質から成る層であることが好ましい。第1のホストとしては、先に述べた $\alpha$ -NPD、CBP、TC TA、Znp p<sub>2</sub>、ZnBOXの他、9，10-ジ（2-ナフチル）アントラセン（略称：DNA）、9，10-ジ（2-ナフチル）-2-tert-ブチルアントラセン（略称：t-BuDNA）等を用いることができる。また、第2の発光層765は、本発明の有機金属錯体が、本発明の有機金属錯体のエネルギーギャップよりも大きなエネルギーギャップを有する物質（第2のホスト）から成る層中に、分散した状態で含まれた層であることが好ましい。第2のホストとしては、TPAQn、 $\alpha$ -NPD、CBP、TC TA、Znp p<sub>2</sub>、ZnBOX、Alq<sub>3</sub>等を用いることができる。また隔壁層764は、第1の発光層763または第2の発光層765または隔壁層764において発生したエネルギーが第1の発光層763と第2の発光層765の両方に移動でき、且つ第1の発光層763と第2の発光層765のいずれか一方のみにエネルギーが移動しないようにするための機能を有するように形成されていることが好ましい。具体的には、隔壁層764は、TPAQn、 $\alpha$ -NPD、CBP、TC TA、Znp p<sub>2</sub>、ZnBOX等を用いて形成することができる。このように、隔壁層764を設けることで、第1の発光層763と第2の発光層765のいずれか一方のみの発光強度が強くなってしまい、白色発光が得られなくなるという不具合を防ぐことができる。

#### 【0099】

本形態では、第1の発光層763と第2の発光層765のいずれの層にどのような発光物質を含ませるかについて特に限定はないが、本形態のように、陰極として機能する電極（本形態では第2の電極752）に近い方の発光層（本形態では第2の発光層765）に、キャリアをトラップし易い発光物質が含まれるようにすることによって、より効率よく各々の層に含まれる発光物質を発光させることができる。

#### 【0100】

また、本形態では、図2のように二層の発光層が設けられた発光素子について記載しているが、発光層の層数は二層に限定されるものではなく、例えば三層であってもよい。そして、それぞれの発光層からの発光を組み合わせ、白色として視認されるようにすればよい。

#### 【0101】

また、第1の発光層763と第1の電極751との間には、図2に示すように電子輸送層762が設けられていてもよい。また、電子輸送層762の他、電子注入層761が電子輸送層762と第1の電極751との間に設けられていてもよい。また、第2の発光層765と第2の電極752との間には、図2に示すように正孔輸送層766が設けられていてもよい。また、正孔輸送層766と第2の電極752の間には正孔注入層767が設けられていてもよい。

#### 【0102】

また、図2を用いて説明したような発光素子の他、図3に表されるような、発光素子で

あってもよい。

#### 【0103】

図3の発光素子は、第1の電極771と第2の電極772との間には、第1の発光層783と第2の発光層788とを有する。第1の発光層783と第2の発光層788との間には、第1の層785と第2の層786とを有する。

#### 【0104】

第1の層785は正孔を発生する層であり、第2の層786は電子を発生する層である。第1の電極771の電位よりも第2の電極772の電位の方が高くなるように電圧を印加したとき、第1の電極771から注入された電子と、第1の層785から注入された正孔とは、第1の発光層783において再結合し、第1の発光層783に含まれた発光物質が発光する。さらに、第2の電極から注入された正孔と第2の層786から注入された電子とは第2の発光層788において再結合し、第2の発光層788に含まれた発光物質が発光する。

#### 【0105】

第1の発光層783には、本発明の有機金属錯体が発光物質として機能するように含まれており、第1の発光層783からは、580～680nmに発光スペクトルのピークを有する発光が得られる。また、第2の発光層788には、ペリレン、TBP、DPVBi、BCzVBi、BAIq、Gamq<sub>2</sub>Clなどの蛍光物質や、Ir(CF<sub>3</sub>ppy)<sub>2</sub>(pic)、FIr(acaac)、FIr(pic)などの燐光物質に代表される発光物質が含まれており、450～510nmに発光スペクトルのピークを有する発光が得られる。第1の発光層783からの発光と、第2の発光層788からの発光とは、第1の電極771または第2の電極772とのいずれか一若しくは両方から射出する。そして、両発光層からの発光は視覚的に混合され、白色光として視認される。

#### 【0106】

第1の発光層783において、本発明の有機金属錯体は、前述のように第1のホストに分散して含まれていることが好ましい。第2の発光層788についても、前述の第2の発光層788と同様にして形成されたものであることが好ましい。

#### 【0107】

第1の層785は、電子よりも正孔の輸送性が高い物質の中に、その物質に対し電子受容性を示す物質とを含む層であることが好ましい。電子よりも正孔の輸送性が高い物質としては、正孔輸送層を形成するときに用いる物質と同様のものを用いればよい。また電子よりも正孔の輸送性が高い物質に対し電子受容性を示す物質としては、モリブデン酸化物、バナジウム酸化物、7,7,8,8-テトラシアノキノジメタン（略称：TCNQ）、2,3,5,6-テトラフルオロ-7,7,8,8-テトラシアノキノジメタン（略称：F4-TCNQ）等を用いることができる。

#### 【0108】

第2の層786は、正孔よりも電子の輸送性が高い物質の中に、その物質に対し電子供与性を示す物質とを含む層であることが好ましい。正孔よりも電子の輸送性が高い物質としては、電子輸送層を形成するときに用いる物質と同様のものを用いればよい。また正孔よりも電子の輸送性が高い物質に対し電子供与性を示す物質としては、リチウム、セシウム等のアルカリ金属、マグネシウム、カルシウム等のアルカリ土類金属、エルビウム、イッテルビウム等の希土類金属等を用いることができる。

#### 【0109】

また、第1の発光層783と第1の電極771との間には、図3に示すように、電子輸送層782が設けられていてもよい。また、電子輸送層782と第1の電極771との間には電子注入層781が設けられていてもよい。また、第1の発光層783と第1の層785との間には、正孔輸送層784が設けられていてもよい。また、第2の発光層788と第2の電極772との間には、正孔輸送層789が設けられていてもよい。また、正孔輸送層789と第2の電極772との間には正孔注入層790が設けられていてもよい。また、第2の発光層788と第2の層786との間には電子輸送層787が設けられてい

てもよい。

#### 【0110】

また、本形態では、図3のように二層の発光層が設けられた発光素子について記載しているが、発光層の層数は二層に限定されるものではなく、例えば三層であってもよい。そして、それぞれの発光層からの発光を組み合わせ、白色として視認されるようにすればよい。

#### 【0111】

(実施の形態5)

本発明の有機金属錯体を増感剤として用いた発光素子の態様について、図4を用いて説明する。

#### 【0112】

図4には、第1の電極181と第2の電極182との間に発光層193を有する発光素子が表されている。そして、発光層193には、一般式(1)、(2)、(12)、(13)のいずれかで表される構造を含む本発明の有機金属錯体、または一般式(3)、(4)、(14)、(15)のいずれかで表される本発明の有機金属錯体と、本発明の有機金属錯体よりも長波長の発光を呈することのできる蛍光性化合物とが含まれている。ここで、蛍光性化合物とは、励起状態から基底状態に戻るときに蛍光を発光する物質である。

#### 【0113】

このような発光素子において、第1の電極181から注入された正孔と、第2の電極182から注入された電子とは、発光層193において再結合し、蛍光性化合物を励起状態にする。そして、励起状態の蛍光性化合物は基底状態に戻るときに発光する。この時、本発明の有機金属錯体は、蛍光性化合物に対し増感剤として作用し、蛍光性化合物の一重項励起状態の数を増幅する。このように、本発明の有機金属錯体を増感剤として用いることによって発光効率の良い発光素子を得ることができる。なお、本形態の発光素子において、第1の電極181は陽極として機能し、第2の電極182は陰極として機能する。

#### 【0114】

ここで、発光層193について特に限定はないが、本発明の有機金属錯体と蛍光性化合物とが、本発明の有機金属錯体の有するエネルギーギャップよりも大きいエネルギーギャップを有する物質からなる層中に、分散して含まれた層であることが好ましい。これによって、本発明の有機金属錯体からの発光が、濃度に起因して消光してしまうことを防ぐことができる。なお、エネルギーギャップとはLUMO準位とHOMO準位との間のエネルギーギャップを言う。

#### 【0115】

ここで、蛍光性化合物について特に限定はなく、マグネシウムフタロシアニン、フタロシアニン等の赤色～赤外の発光を示す化合物が好ましい。

#### 【0116】

また、本発明の有機金属錯体と蛍光性化合物とを分散状態にするために用いる物質について特に限定はなく、実施の形態3において記載した、本発明の有機金属錯体を分散状態にするために用いることの出来る物質等を用いることができる。

#### 【0117】

また、第1の電極と第2の電極とについても特に限定はなく、実施の形態3に記載の第1の電極181、第2の電極182と同様のものを用いることができる。

#### 【0118】

また、第1の電極181と発光層193との間には、図4に表されるように、正孔輸送層191、正孔注入層192等を設けてもよい。また、第2の電極182と発光層193との間にも、電子輸送層194、電子注入層195等を設けてもよい。

#### 【0119】

正孔輸送層191、正孔注入層192、電子輸送層194、電子注入層195は、それぞれ、実施の形態3に記載の正孔輸送層162、正孔注入層161、電子輸送層164、電子注入層165と同様のものを用いることができる。また、正孔輸送層191、正孔注

入層 1 9 2、電子輸送層 1 9 4、電子注入層 1 9 5 と異なった機能を有する他の機能層等  
を設けてもよい。

#### 【0 1 2 0】

以上に述べた発光素子は、本発明の有機金属錯体を増感剤として用いることによって得  
られるものである。

#### 【0 1 2 1】

(実施の形態 6)

本発明の有機金属錯体を含む本発明の発光素子は、良好な発光色を呈するため、本発明  
の発光素子を画素として用いることによって、色彩の良好な画像を映す機能を有する発光  
装置を得ることができる。また、本発明の発光素子は効率よく発光することができるため  
、本発明の発光素子を画素などに用いることによって、消費電力の低い発光装置を得るこ  
とができる。

#### 【0 1 2 2】

本形態では、表示機能を有する発光装置の回路構成および駆動方法について図 5 ～ 8 を  
用いて説明する。

#### 【0 1 2 3】

図 5 は本発明を適用した発光装置を上面からみた模式図である。図 5 において、基板 6  
5 0 0 上には、画素部 6 5 1 1 と、ソース信号線駆動回路 6 5 1 2 と、書込用ゲート信号  
線駆動回路 6 5 1 3 と、消去用ゲート信号線駆動回路 6 5 1 4 とが設けられている。ソー  
ス信号線駆動回路 6 5 1 2 と、書込用ゲート信号線駆動回路 6 5 1 3 と、消去用ゲート信  
号線駆動回路 6 5 1 4 とは、それぞれ、配線群を介して、外部入力端子である F P C (フ  
レキシブルプリントサーキット) 6 5 0 3 と接続している。そして、ソース信号線駆動回  
路 6 5 1 2 と、書込用ゲート信号線駆動回路 6 5 1 3 と、消去用ゲート信号線駆動回路 6  
5 1 4 とは、それぞれ、F P C 6 5 0 3 からビデオ信号、クロック信号、スタート信号、  
リセット信号等を受け取る。また F P C 6 5 0 3 にはプリント配線基盤 (P W B) 6 5 0  
4 が取り付けられている。なお、駆動回路部は、上記のように必ずしも画素部 6 5 1 1 と  
同一基板上に設けられている必要はなく、例えば、配線パターンが形成された F P C 上に  
I C チップを実装したもの (T C P) 等を利用し、基板外部に設けられていてもよい。

#### 【0 1 2 4】

画素部 6 5 1 1 には、列方向に延びた複数のソース信号線が行方向に並んで配列してい  
る。また、電流供給線が行方向に並んで配列している。また、画素部 6 5 1 1 には、行方  
向に延びた複数のゲート信号線が列方向に並んで配列している。また画素部 6 5 1 1 には  
、発光素子を含む一組の回路が複数配列している。

#### 【0 1 2 5】

図 6 は、一画素を動作するための回路を表した図である。図 6 に示す回路には、第 1 の  
トランジスタ 9 0 1 と第 2 のトランジスタ 9 0 2 と発光素子 9 0 3 とが含まれている。

#### 【0 1 2 6】

第 1 のトランジスタ 9 0 1 と、第 2 のトランジスタ 9 0 2 とは、それぞれ、ゲート電極  
と、ドレイン領域と、ソース領域とを含む三端子の素子であり、ドレイン領域とソース領  
域の間にチャネル領域を有する。ここで、ソース領域とドレイン領域とは、トランジスタ  
の構造や動作条件等によって変わるため、いずれがソース領域またはドレイン領域であ  
るかを限定することが困難である。そこで、本形態においては、ソースまたはドレインと  
して機能する領域を、それぞれ第 1 電極、第 2 電極と表記する。

#### 【0 1 2 7】

ゲート信号線 9 1 1 と、書込用ゲート信号線駆動回路 9 1 3 とはスイッチ 9 1 8 によ  
って電氣的に接続または非接続の状態になるように設けられている。また、ゲート信号線 9  
1 1 と、消去用ゲート信号線駆動回路 9 1 4 とはスイッチ 9 1 9 によって電氣的に接続ま  
たは非接続の状態になるように設けられている。また、ソース信号線 9 1 2 は、スイッチ  
9 2 0 によってソース信号線駆動回路 9 1 5 または電源 9 1 6 のいずれかに電氣的に接続  
するように設けられている。そして、第 1 のトランジスタ 9 0 1 のゲートはゲート信号線

9 1 1に電氣的に接続している。また、第1のトランジスタの第1電極はソース信号線9 1 2に電氣的に接続し、第2電極は第2のトランジスタ9 0 2のゲート電極と電氣的に接続している。第2のトランジスタ9 0 2の第1電極は電流供給線9 1 7と電氣的に接続し、第2電極は発光素子9 0 3に含まれる一の電極と電氣的に接続している。なお、スイッチ9 1 8は、書込用ゲート信号線駆動回路9 1 3に含まれていてもよい。またスイッチ9 1 9についても消去用ゲート信号線駆動回路9 1 4の中に含まれていてもよい。また、スイッチ9 2 0についてもソース信号線駆動回路9 1 5の中に含まれていてもよい。

#### 【0128】

また画素部におけるトランジスタや発光素子等の配置について特に限定はないが、例えば図7の上面図に表すように配置することができる。図7において、第1のトランジスタ1 0 0 1の第1電極はソース信号線1 0 0 4に接続し、第2の電極は第2のトランジスタ1 0 0 2のゲート電極に接続している。また第2トランジスタの第1電極は電流供給線1 0 0 5に接続し、第2電極は発光素子の電極1 0 0 6に接続している。ゲート信号線1 0 0 3の一部は第1のトランジスタ1 0 0 1のゲート電極として機能する。

#### 【0129】

次に、駆動方法について説明する。図8は時間経過に伴ったフレームの動作について説明する図である。図8において、横方向は時間経過を表し、縦方向はゲート信号線の走査段数を表している。

#### 【0130】

本発明の発光装置を用いて画像表示を行うとき、表示期間においては、画面の書き換え動作と表示動作とが繰り返し行われる。この書き換え回数について特に限定はないが、画像をみる人がちらつき（フリッカ）を感じないように少なくとも1秒間に60回程度とすることが好ましい。ここで、一画面（1フレーム）の書き換え動作と表示動作を行う期間を1フレーム期間という。

#### 【0131】

1フレームは、図8に示すように、書き込み期間5 0 1 a、5 0 2 a、5 0 3 a、5 0 4 aと保持期間5 0 1 b、5 0 2 b、5 0 3 b、5 0 4 bとを含む4つのサブフレーム5 0 1、5 0 2、5 0 3、5 0 4に時分割されている。発光するための信号を与えられた発光素子は、保持期間において発光状態となっている。各々のサブフレームにおける保持期間の長さの比は、第1のサブフレーム5 0 1：第2のサブフレーム5 0 2：第3のサブフレーム5 0 3：第4のサブフレーム5 0 4＝ $2^3:2^2:2^1:2^0=8:4:2:1$ となっている。これによって4ビット階調を表現することができる。但し、ビット数及び階調数はここに記すものに限定されず、例えば8つのサブフレームを設け8ビット階調を行えるようにしてもよい。

#### 【0132】

1フレームにおける動作について説明する。まず、サブフレーム5 0 1において、1行目から最終行まで順に書き込み動作が行われる。従って、行によって書き込み期間の開始時間が異なる。書き込み期間5 0 1 aが終了した行から順に保持期間5 0 1 bへと移る。当該保持期間において、発光するための信号を与えられている発光素子は発光状態となっている。また、保持期間5 0 1 bが終了した行から順に次のサブフレーム5 0 2へ移り、サブフレーム5 0 1の場合と同様に1行目から最終行まで順に書き込み動作が行われる。以上のような動作を繰り返し、サブフレーム5 0 4の保持期間5 0 4 b迄終了する。サブフレーム5 0 4における動作を終了したら次のフレームへ移る。このように、各サブフレームにおいて発光した時間の積算時間が、1フレームにおける各々の発光素子の発光時間となる。この発光時間を発光素子ごとに変えて一画素内で様々な組み合わせることによって、明度および色度の異なる様々な表示色を形成することができる。

#### 【0133】

サブフレーム5 0 4のように、最終行目までの書込が終了する前に、既に書込を終え、保持期間に移行した行における保持期間を強制的に終了させたいときは、保持期間5 0 4 bの後に消去期間5 0 4 cを設け、強制的に非発光の状態となるように制御することが好

ましい。そして、強制的に非発光状態にした行については、一定期間、非発光の状態を保つ（この期間を非発光期間504dとする。）。そして、最終行目の書込期間が終了したら直ちに、一行目から順に次の（またはフレーム）の書込期間に移行する。これによって、サブフレーム504の書き込み期間と、その次のサブフレームの書き込み期間とが重畳することを防ぐことができる。

#### 【0134】

なお、本形態では、サブフレーム501乃至504は保持期間の長いものから順に並んでいるが、必ずしも本実施例のような並びにする必要はなく、例えば保持期間の短いものから順に並べられていてもよいし、または保持期間の長いものと短いものとがランダムに並んでいてもよい。また、サブフレームは、さらに複数のフレームに分割されていてもよい。つまり、同じ映像信号を与えている期間、ゲート信号線の走査を複数回行ってよい。

#### 【0135】

ここで、書込期間および消去期間における、図6で示す回路の動作について説明する。

#### 【0136】

まず書込期間における動作について説明する。書込期間において、n行目（nは自然数）のゲート信号線911は、スイッチ918を介して書込用ゲート信号線駆動回路913と電氣的に接続し、消去用ゲート信号線駆動回路914とは非接続である。また、ソース信号線912はスイッチ920を介してソース信号線駆動回路と電氣的に接続している。ここで、n行目（nは自然数）のゲート信号線911に接続した第1のトランジスタ901のゲートに信号が入力され、第1のトランジスタ901はオンとなる。そして、この時、1列目から最終列目迄のソース信号線に同時に映像信号が入力される。なお、各列のソース信号線912から入力される映像信号は互いに独立したものである。ソース信号線912から入力された映像信号は、各々のソース信号線に接続した第1のトランジスタ901を介して第2のトランジスタ902のゲート電極に入力される。この時第2のトランジスタ902に入力された信号によって、電流供給線917から発光素子903へ供給される電流値が決まる。そして、その電流値に依存して発光素子903は発光または非発光が決まる。例えば、第2のトランジスタ902がPチャネル型である場合は、第2のトランジスタ902のゲート電極にLow Levelの信号が入力されることによって発光素子903が発光する。一方、第2のトランジスタ902がNチャネル型である場合は、第2のトランジスタ902のゲート電極にHigh Levelの信号が入力されることによって発光素子903が発光する。

#### 【0137】

次に消去期間における動作について説明する。消去期間において、n行目（nは自然数）のゲート信号線911は、スイッチ919を介して消去用ゲート信号線駆動回路914と電氣的に接続し、書込用ゲート信号線駆動回路913とは非接続である。また、ソース信号線912はスイッチ920を介して電源916と電氣的に接続している。ここで、n行目のゲート信号線911に接続した第1のトランジスタ901のゲートに信号が入力され、第1のトランジスタ901はオンとなる。そして、この時、1列目から最終列目迄のソース信号線に同時に消去信号が入力される。ソース信号線912から入力された消去信号は、各々のソース信号線に接続した第1のトランジスタ901を介して第2のトランジスタ902のゲート電極に入力される。この時第2のトランジスタ902に入力された信号によって、電流供給線917から発光素子903への電流の供給が阻止される。そして、発光素子903は強制的に非発光となる。例えば、第2のトランジスタ902がPチャネル型である場合は、第2のトランジスタ902のゲート電極にHigh Levelの信号が入力されることによって発光素子903は非発光となる。一方、第2のトランジスタ902がNチャネル型である場合は、第2のトランジスタ902のゲート電極にLow Levelの信号が入力されることによって発光素子903は非発光となる。

#### 【0138】

なお、消去期間では、n行目（nは自然数）については、以上に説明したような動作に

よって消去する為の信号を入力する。しかし、前述のように、 $n$ 行目が消去期間であると共に、他の行（ $m$ 行目（ $m$ は自然数）とする。）については書込期間となる場合がある。このような場合、同じ列のソース信号線を利用して $n$ 行目には消去の為の信号を、 $m$ 行目には書込の為の信号を入力する必要があるため、以下に説明するような動作させることが好ましい。

#### 【0139】

先に説明した消去期間における動作によって、 $n$ 行目の発光素子903が非発光となった後、直ちに、ゲート信号線と消去用ゲート信号線駆動回路914とを非接続の状態とすると共に、スイッチ918を切り替えてソース信号線とソース信号線駆動回路915と接続させる。そして、ソース信号線とソース信号線駆動回路915とを接続させる共に、ゲート信号線と書込用ゲート信号線駆動回路913とを接続させる。そして、書込用ゲート信号線駆動回路913から $m$ 行目の信号線に選択的に信号が入力され、第1のトランジスタがオンすると共に、ソース信号線駆動回路915からは、1列目から最終列目迄のソース信号線に書込の為の信号が入力される。この信号によって、 $m$ 行目の発光素子は、発光または非発光となる。

#### 【0140】

以上のようにして $m$ 行目について書込期間を終えたら、直ちに、 $n+1$ 行目の消去期間に移行する。その為に、ゲート信号線と書込用ゲート信号線駆動回路913を非接続とすると共に、スイッチ918を切り替えてソース信号線を電源916と接続する。また、ゲート信号線と書込用ゲート信号線駆動回路913を非接続とすると共に、ゲート信号線については、消去用ゲート信号線駆動回路914と接続状態にする。そして、消去用ゲート信号線駆動回路914から $n+1$ 行目のゲート信号線に選択的に信号を入力して第1のトランジスタに信号をオンする共に、電源916から消去信号が入力される。このようにして、 $n+1$ 行目の消去期間を終えたら、直ちに、 $m$ 行目の書込期間に移行する。以下、同様に、消去期間と書込期間とを繰り返し、最終行目の消去期間まで動作させればよい。

#### 【0141】

なお、本形態では、 $n$ 行目の消去期間と $n+1$ 行目の消去期間との間に $m$ 行目の書込期間を設ける態様について説明したが、これに限らず、 $n-1$ 行目の消去期間と $n$ 行目の消去期間との間に $m$ 行目の書込期間を設けてもよい。

#### 【0142】

また、本形態では、サブフレーム504のように非発光期間504dを設けるときにおいて、消去用ゲート信号線駆動回路914と或る一のゲート信号線とを非接続状態にすると共に、書込用ゲート信号線駆動回路913と他のゲート信号線とを接続状態にする動作を繰り返している。このような動作は、特に非発光期間を設けないフレームにおいて行っても構わない。

#### 【0143】

（実施の形態7）

本発明の発光素子を含む発光装置の断面図の一態様について、図9を用いて説明する。

#### 【0144】

図9において、点線で囲まれているのは、本発明の発光素子12を駆動するために設けられているトランジスタ11である。発光素子12は、第1の電極13と第2の電極14との間に正孔を発生する層と電子を発生する層と発光物質を含む層とが積層された層15を有する本発明の発光素子である。トランジスタ11のドレインと第1の電極13とは、第1層間絶縁膜16（16a、16b、16c）を貫通している配線17によって電氣的に接続されている。また、発光素子12は、隔壁層18によって、隣接して設けられている別の発光素子と分離されている。このような構成を有する本発明の発光装置は、本形態において、基板10上に設けられている。

#### 【0145】

なお、図9に示されたトランジスタ11は、半導体層を中心として基板と逆側にゲート電極が設けられたトップゲート型のものである。但し、トランジスタ11の構造について

は、特に限定はなく、例えばボトムゲート型のものでもよい。またボトムゲートの場合には、チャンネルを形成する半導体層の上に保護膜が形成されたもの（チャンネル保護型）でもよいし、或いはチャンネルを形成する半導体層の一部が凹状になったもの（チャンネルエッチ型）でもよい。なお、21はゲート電極、22はゲート絶縁膜、23は半導体層、24はn型の半導体層、25は電極、26は保護膜である。

#### 【0146】

また、トランジスタ11を構成する半導体層は、結晶性、非結晶性のいずれのものでもよい。また、セミアモルファス等でもよい。

#### 【0147】

なお、セミアモルファスな半導体とは、次のようなものである。非晶質と結晶構造（単結晶、多結晶を含む）の中間的な構造を有し、自由エネルギー的に安定な第3の状態を有する半導体であって、短距離秩序を持ち格子歪みを有する結晶質な領域を含んでいるものである。また少なくとも膜中の一部の領域には、0.5～20nmの結晶粒を含んでいる。ラマンスペクトルが $520\text{ cm}^{-1}$ よりも低波数側にシフトしている。X線回折ではSi結晶格子に由来するとされる（111）、（220）の回折ピークが観測される。未結合手（ダングリングボンド）の中和剤として水素またはハロゲンを少なくとも1原子%またはそれ以上含ませている。所謂微結晶半導体（マイクロクリスタル半導体）とも言われている。珪化物気体をグロー放電分解（プラズマCVD）して形成する。珪化物気体としては、 $\text{SiH}_4$ 、その他にも $\text{Si}_2\text{H}_6$ 、 $\text{SiH}_2\text{Cl}_2$ 、 $\text{SiHCl}_3$ 、 $\text{SiCl}_4$ 、 $\text{SiF}_4$ などを用いることが可。この珪化物気体を $\text{H}_2$ 、又は、 $\text{H}_2$ とHe、Ar、Kr、Neから選ばれた一種または複数種の希ガス元素で希釈しても良い。希釈率は2～1000倍の範囲。圧力は概略0.1Pa～133Paの範囲、電源周波数は1MHz～120MHz、好ましくは13MHz～60MHz。基板加熱温度は300℃以下でよく、好ましくは100～250℃。膜中の不純物元素として、酸素、窒素、炭素などの大気成分の不純物は $1 \times 10^{20} / \text{cm}^3$ 以下とすることが望ましく、特に、酸素濃度は $5 \times 10^{19} / \text{cm}^3$ 以下、好ましくは $1 \times 10^{19} / \text{cm}^3$ 以下とする。なお、セミアモルファスなものを有する半導体を用いたTFET（薄膜トランジスタ）の移動度はおよそ $1 \sim 10 \text{ m}^2 / \text{V s e c}$ となる。

#### 【0148】

また、半導体層が結晶性のものの具体例としては、単結晶または多結晶性の珪素、或いはシリコンゲルマニウム等から成るものが挙げられる。これらはレーザー結晶化によって形成されたものでもよいし、例えばニッケル等を用いた固相成長法による結晶化によって形成されたものでもよい。

#### 【0149】

なお、半導体層が非晶質の物質、例えばアモルファスシリコンで形成される場合には、トランジスタ11およびその他のトランジスタ（発光素子を駆動するための回路を構成するトランジスタ）は全てNチャンネル型トランジスタで構成された回路を有する発光装置であることが好ましい。それ以外については、Nチャンネル型またはPチャンネル型のいずれか一のトランジスタで構成された回路を有する発光装置でもよいし、両方のトランジスタで構成された回路を有する発光装置でもよい。

#### 【0150】

さらに、第1層間絶縁膜16は、図9（A）、（C）に示すように多層でもよいし、または単層でもよい。なお、16aは酸化珪素や窒化珪素のような無機物から成り、16bはアクリルやシロキサン（シリコン（Si）と酸素（O）との結合で骨格構造が構成され、置換基に少なくとも水素を含む物質）、塗布成膜可能な酸化珪素等の自己平坦性を有する物質から成る。さらに、16cはアルゴン（Ar）を含む窒化珪素膜から成る。なお、各層を構成する物質については、特に限定はなく、ここに述べたもの以外のものを用いてもよい。また、これら以外の物質から成る層をさらに組み合わせてもよい。このように、第1層間絶縁膜16は、無機物または有機物の両方を用いて形成されたものでもよいし、または無機膜と有機膜のいずれか一で形成されたものでもよい。



#### 【0151】

隔壁層18は、エッジ部において、曲率半径が連続的に変化する形状であることが好ましい。また隔壁層18は、アクリルやシロキサン、レジスト、酸化珪素等を用いて形成される。なお隔壁層18は、無機膜と有機膜のいずれか一で形成されたものでもよい、または両方を用いて形成されたものでもよい。

#### 【0152】

なお、図9（A）、（C）では、第1層間絶縁膜16のみがトランジスタ11と発光素子12の間に設けられた構成であるが、図9（B）のように、第1層間絶縁膜16（16a、16b）の他、第2層間絶縁膜19（19a、19b）が設けられた構成のものであってもよい。図9（B）に示す発光装置においては、第1の電極13は第2層間絶縁膜19を貫通し、配線17と接続している。

#### 【0153】

第2層間絶縁膜19は、第1層間絶縁膜16と同様に、多層でもよいし、または単層でもよい。19aはアクリルやシロキサン（シリコン（Si）と酸素（O）との結合で骨格構造が構成され、置換基に少なくとも水素を含む物質）、塗布成膜可能な酸化珪素等の自己平坦性を有する物質から成る。さらに、19bはアルゴン（Ar）を含む窒化珪素膜から成る。なお、各層を構成する物質については、特に限定はなく、ここに述べたもの以外のものを用いてもよい。また、これら以外の物質から成る層をさらに組み合わせてもよい。このように、第2層間絶縁膜19は、無機物または有機物の両方を用いて形成されたものでもよいし、または無機膜と有機膜のいずれか一で形成されたものでもよい。

#### 【0154】

発光素子12において、第1の電極および第2の電極がいずれも透光性を有する物質で構成されている場合、図9（A）の白抜きの矢印で表されるように、第1の電極13側と第2の電極14側の両方から発光を取り出すことができる。また、第2の電極14のみが透光性を有する物質で構成されている場合、図9（B）の白抜きの矢印で表されるように、第2の電極14側のみから発光を取り出すことができる。この場合、第1の電極13は反射率の高い材料で構成されているか、または反射率の高い材料から成る膜（反射膜）が第1の電極13の下方に設けられていることが好ましい。また、第1の電極13のみが透光性を有する物質で構成されている場合、図9（C）の白抜きの矢印で表されるように、第1の電極13側のみから発光を取り出すことができる。この場合、第2の電極14は反射率の高い材料で構成されているか、または反射膜が第2の電極14の上方に設けられていることが好ましい。

#### 【0155】

また、発光素子12は、第1の電極13の電位よりも第2の電極14の電位が高くなるように電圧を印加したときに動作するように層15が積層されたものであってもよいし、或いは、第1の電極13の電位よりも第2の電極14の電位が低くなるように電圧を印加したときに動作するように層15が積層されたものであってもよい。前者の場合、トランジスタ11はNチャネル型トランジスタであり、後者の場合、トランジスタ11はPチャネル型トランジスタである。

#### 【0156】

以上のように、本実施の形態では、トランジスタによって発光素子の駆動を制御するアクティブ型の発光装置について説明したが、この他、トランジスタ等の駆動用の素子を特に設けずに発光素子を駆動させるパッシブ型の発光装置であってもよい。パッシブ型の発光装置においても、低駆動電圧で動作する本発明の発光素子を含むことによって、低消費電力で駆動させることができる。

#### 【0157】

以下、実施例に基づき本発明をさらに詳しく説明するが、本発明がこれら実施例に限定されないことはもちろんである。まず、有機金属錯体の合成例を記載し、次いで本発明の発光素子の素子構造、その作製方法および発光装置の実施例を記載している。

#### 【0158】

## (実施の形態 8)

本発明の発光素子を含む発光装置は良好な画像を表示することができるため、本発明の発光装置を電子機器の表示部に適用することによって、優れた映像を提供できる電子機器を得ることができる。また、本発明の発光素子を含む発光装置は低消費電力で駆動するため、本発明の発光装置を電子機器の表示部に適用することによって、消費電力の少ない電子機器を得ることができ、例えば、待受時間等の長い電話機等を得ることができる。

### 【0159】

本発明を適用した発光装置を実装した電子機器の一実施例を図10に示す。

### 【0160】

図10(A)は、本発明を適用して作製したノート型のパーソナルコンピュータであり、本体5521、筐体5522、表示部5523、キーボード5524などによって構成されている。本発明の発光素子を有する発光装置を表示部として組み込むことでパーソナルコンピュータを完成できる。

### 【0161】

図10(B)は、本発明を適用して作製した電話機であり、本体5552には表示部5551と、音声出力部5554、音声入力部5555、操作スイッチ5556、5557、アンテナ5553等によって構成されている。本発明の発光素子を有する発光装置を表示部として組み込むことで電話機を完成できる。

### 【0162】

図10(C)は、本発明を適用して作製したテレビ受像機であり、表示部5531、筐体5532、スピーカー5533などによって構成されている。本発明の発光素子を有する発光装置を表示部として組み込むことでテレビ受像機を完成できる。

### 【0163】

以上のように本発明の発光装置は、各種電子機器の表示部として用いるのに非常に適している。

### 【0164】

なお、本形態では、パーソナルコンピュータについて述べているが、この他に電話機、ナビゲーション装置、或いは照明機器等に本発明の発光素子を有する発光装置を実装しても構わない。

## 【実施例 1】

### 【0165】

以下、本発明の有機金属錯体の合成例について説明する。但し、本発明は、以下に示す合成例の有機金属錯体に限定されるものではない。

### 【0166】

#### 《合成例 1》

本合成例は、構造式(16)で表されるビス{2,3-ビス(4-フルオロフェニル)キノキサリナト}イリジウム(I I I)アセチルアセトネート〔略称：Ir(Fdpq)<sub>2</sub>(acac)〕の合成例である。

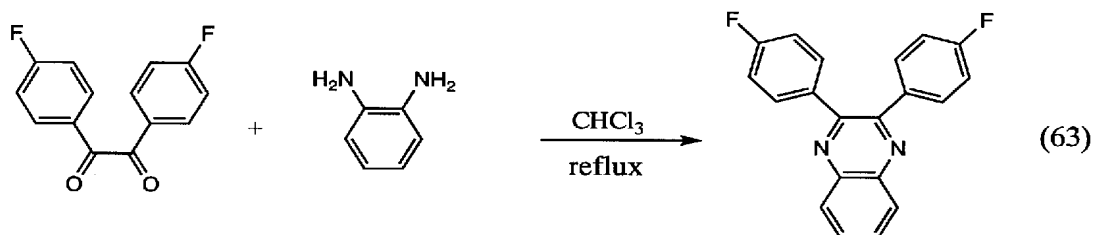
### 【0167】

#### 〈ステップ1：配位子(HFdpq)の合成〉

まず、4,4'-ジフルオロベンジル3.71gとo-フェニレンジアミン1.71gを溶媒クロロホルム200mL中で6時間、加熱攪拌した。反応溶液を室温に戻し、1NHClと飽和食塩水で洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を留去することにより、配位子HFdpq〔2,3-ビス(4-フルオロフェニル)キノキサリン〕を得た(淡黄色粉末、収率99%)。合成スキームおよび配位子HFdpqの構造式を下記式(63)に示す。

### 【0168】

【化58】



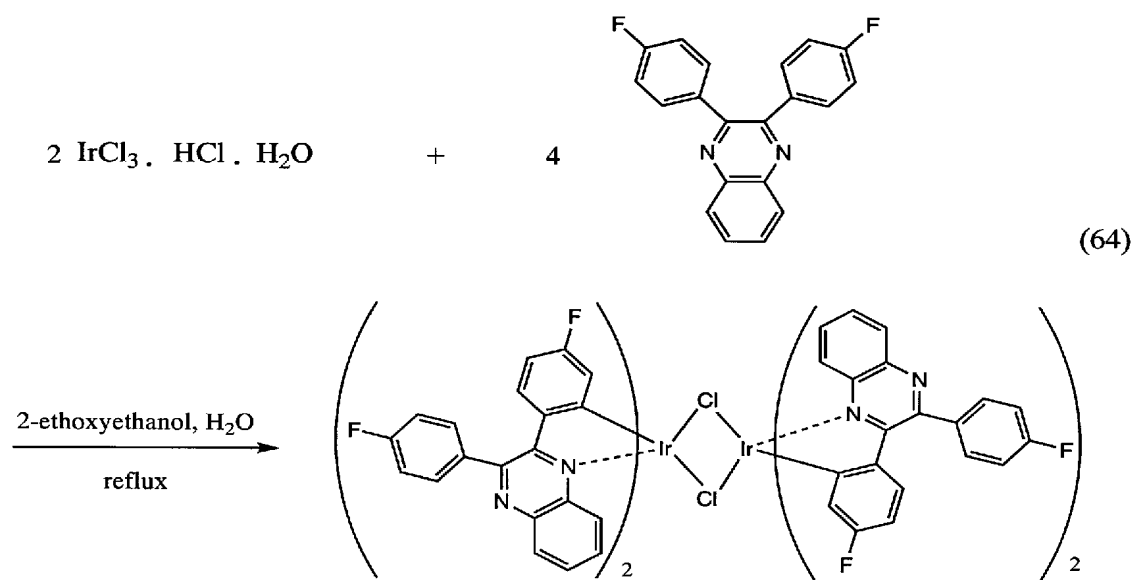
【0169】

〈ステップ2：複核錯体  $[\text{Ir}(\text{Fdpq})_2\text{Cl}]_2$  の合成〉

まず、2-エトキシエタノール 30 ml と水 10 ml との混合液を溶媒として、配位子  $\text{HFdpq}$  (2,3-ビス-(4-フルオロフェニル)キノキサリン) を 3.61 g、塩化イリジウム ( $\text{IrCl}_3 \cdot \text{HCl} \cdot \text{H}_2\text{O}$ ) を 1.35 g 混合し、窒素雰囲気下 17 時間還流することにより、複核錯体  $[\text{Ir}(\text{Fdpq})_2\text{Cl}]_2$  を得た (褐色粉末、収率 99%)。合成スキームおよび複核錯体  $[\text{Ir}(\text{Fdpq})_2\text{Cl}]_2$  の構造式を下記式 (64) に示す。

【0170】

【化59】



【0171】

〈ステップ3：本発明の発光素子で用いる有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  の合成〉

さらに、2-エトキシエタノール 30 ml を溶媒として、上記ステップ2で得られた複核錯体  $[\text{Ir}(\text{Fdpq})_2\text{Cl}]_2$  を 2.00 g、アセチルアセトン ( $\text{Hacac}$ ) を 0.44 ml、炭酸ナトリウムを 1.23 g 混合し、窒素雰囲気下にて 20 時間還流することにより、前記構造式 (20) で表される本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  を得た (赤色粉末、収率 44%)。合成スキームを下記式 (65) に示す。本有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  の核磁気共鳴分光法 ( $^1\text{H-NMR}$ ) による分析結果は下記のとおりであった。

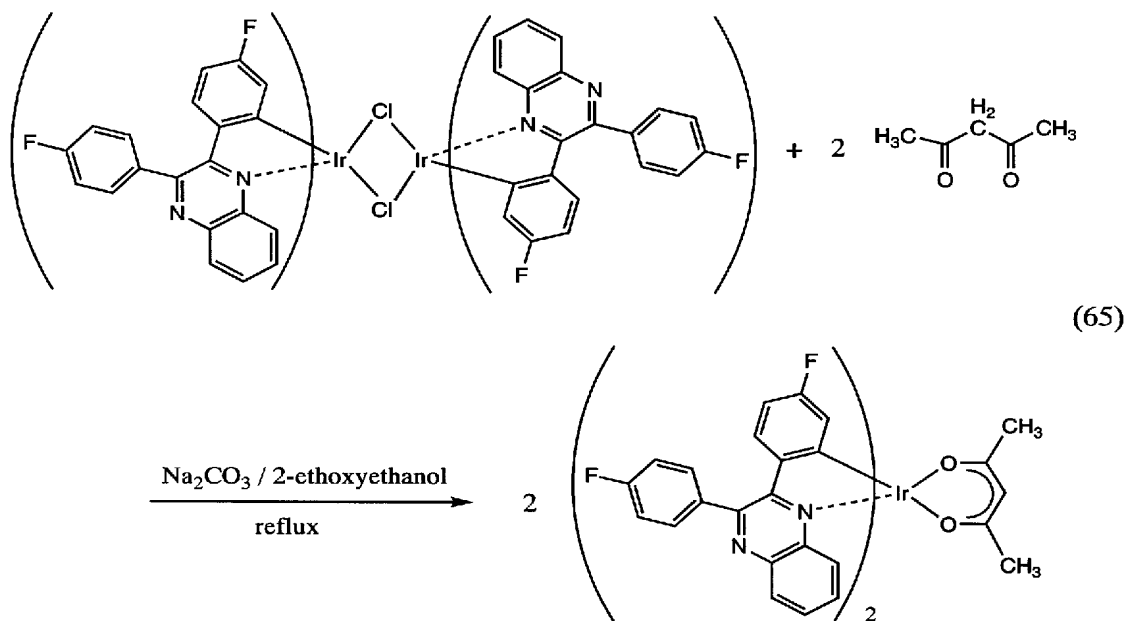
【0172】

$^1\text{H-NMR}$ .  $\delta$  ( $\text{CDCl}_3$ ): 8.20 (d, 2H), 8.11 (d, 2H), 8.01 (brs, 4H), 7.68 (t, 2H), 7.52 (t, 2H), 7.32 (br

m, 4H), 7.08 (m, 2H), 6.39 (td, 2H), 6.05 (dd, 2H), 4.71 (s, 1H), 1.62 (s, 6H)

【0173】

【化60】



【0174】

また、得られた  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  の分解温度  $T_d$  を示唆熱重量同時測定装置（セイコー電子株式会社製，TG/DTA 320型）により測定したところ、 $T_d = 365^\circ\text{C}$  であり、良好な耐熱性を示すことが分かった。

【0175】

また、得られた  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  のジクロロメタン中における吸収スペクトルおよび発光スペクトル（Photo Luminescence）を図11に示す。なお、発光スペクトルは、ハロゲンランプの光をスリットによって分光して取り出した469nmの波長の光を励起光として用いたときに得られたものである。図11において、横軸は波長（nm）を表し、左縦軸は吸光度（単位無し）を表し、右縦軸は発光強度（任意単位（a. u.））を表す。図11からも分かるように、本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  は232nm、284nm、371nmおよび472nmに吸収ピークを有している。また、発光スペクトルは644nmに発光ピークを有する発光であった。そしてこの発光は、赤色と視認された。

【0176】

なお、得られた  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  は長波長側にいくつかの吸収ピークが観測される。これは、オルトメタル錯体等によく見られる有機金属錯体特有の吸収であり、一重項MLCT遷移、三重項 $\pi-\pi^*$ 遷移、三重項MLCT（Metal to ligand charge transfer）遷移などに対応すると類推される。特に、最も長波長側の吸収ピークが可視領域においてブロードな裾を引いており、三重項MLCT遷移特有の吸収スペクトルであると考えられる。すなわち、 $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  は三重項励起状態への直接光励起や項間交差が可能な化合物であることが分かった。

【0177】

また、得られた  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  を含むジクロロメタン溶液に酸素を含む気体を注入し、酸素を溶存させた状態で  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  を発光させたときの発光強度を調べた。また、得られた  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  を含むジクロロメタン溶液にアルゴンを注入し、アルゴンを溶存させた状態で  $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  を発光させたときの発光強度を調べた。

c a c) を発光させたときの発光強度を調べた。その結果、 $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  由来の発光は酸素を溶存させた状態における発光強度よりもアルゴンを溶存させた状態における発光強度の方が強いという、燐光を発光する物質と同様の傾向を示すことが分かった。このことから、 $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  由来の発光は燐光であると考えられる。

【0178】

《合成例2》

本合成例は、構造式(17)で表されるビス(2,3-ジフェニルキノキサリナト)イリジウム( $\text{III}$ )アセチルアセトネート〔略称： $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$ 〕の合成例である。

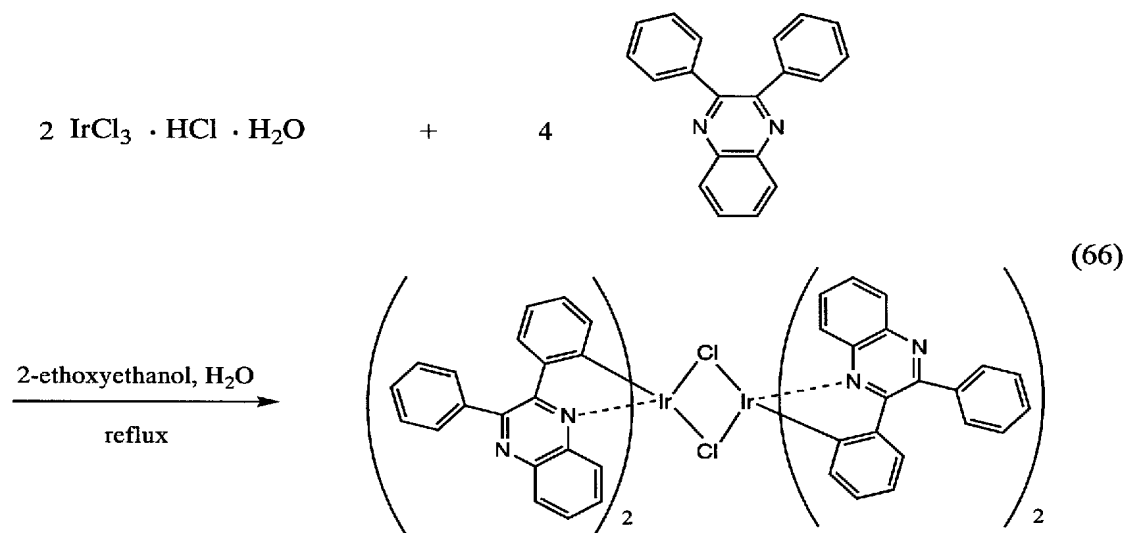
【0179】

〈ステップ1：複核錯体 $\text{Ir}(\text{dpq})_2\text{Cl}$ の合成〉

まず、2-エトキシエタノール30mlと水10mlとの混合液を溶媒として、配位子 $\text{Hdpq}$ (2,3-ジフェニルキノキサリン)の2.36gと、塩化イリジウム( $\text{IrCl}_3 \cdot \text{HCl} \cdot \text{H}_2\text{O}$ )の1.00gを混合し、窒素雰囲気下15時間還流することにより、複核錯体 $\text{Ir}(\text{dpq})_2\text{Cl}$ を得た(暗い褐色粉末、収率91%)。合成スキームおよび複核錯体 $\text{Ir}(\text{dpq})_2\text{Cl}$ の構造式は下記式(66)に示す。

【0180】

【化61】



【0181】

〈ステップ2：本発明の有機金属錯体 $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$ の合成〉

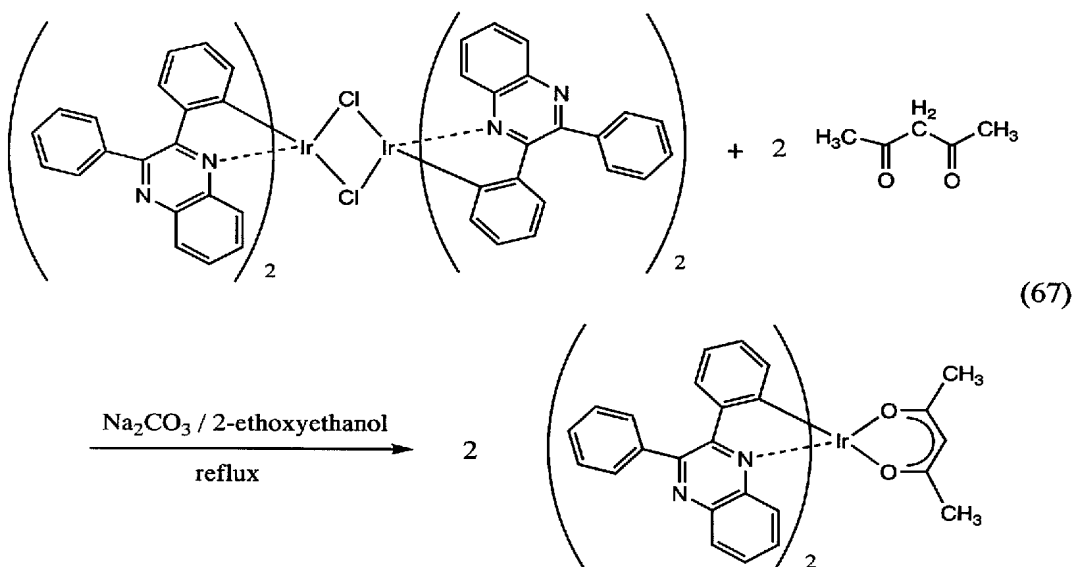
さらに、2-エトキシエタノール30mlを溶媒として、上記ステップ1で得られた $\text{Ir}(\text{dpq})_2\text{Cl}$ を1.00g、アセチルアセトン( $\text{Hacac}$ )を0.20ml、炭酸ナトリウムを0.67g混合し、窒素雰囲気下にて15時間還流した。これを濾過して得られた溶液を、ジクロロメタン溶媒にてカラム精製した。ジクロロメタン/メタノール溶媒より再結晶を行い、本発明で用いる有機金属錯体 $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$ を得た(赤褐色粉末、収率40%)。合成スキームを下記式(67)に示す。本有機金属錯体 $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$ の核磁気共鳴分光法( $^1\text{H-NMR}$ )による分析結果は下記の通りであった。

【0182】

$^1\text{H-NMR}$ .  $\delta$  ( $\text{CDCl}_3$ ): 8.15 (t, 4H), 7.89 (br s, 4H), 7.79 (t, 2H), 7.69 (m, 8H), 6.94 (d, 2H), 6.57 (t, 2H), 6.48 (t, 2H), 6.33 (d, 2H), 4.81 (s, 1H), 1.64 (s, 6H)

【0183】

【化62】



【0184】

また、得られた  $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  の分解温度  $T_d$  を示唆熱重量同時測定装置（セイコー電子株式会社製，TG/DTA 320型）により測定したところ、 $T_d = 340^\circ\text{C}$  であり、良好な耐熱性を示すことが分かった。

【0185】

また、得られた  $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  のジクロロメタン中における吸収スペクトルおよび発光スペクトル（PL）を図12に示す。なお、発光スペクトルは、ハロゲンランプの光をスリットによって分光して取り出した469nmの波長の光を励起光として用いたときに得られたものである。図12において、横軸は波長（nm）を表し、左縦軸は吸光度（単位無し）を表し、右縦軸は発光強度（任意単位）を表す。図12からも分かるように、得られた有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  は248nm、283nm、378nmおよび479nmに吸収ピークを有している。また、発光スペクトルは687nmに発光ピークを有する発光であった。そしてこの発光は、深い赤色と視認された。

【0186】

なお、得られた  $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  は、長波長側にいくつかの吸収ピークが観測される。これは、オルトメタル錯体等によく見られる有機金属錯体特有の吸収であり、一重項MLCT遷移、三重項 $\pi-\pi^*$ 遷移、三重項MLCT遷移などに対応すると類推される。特に、最も長波長側の吸収ピークが可視領域においてブロードな裾を引いており、三重項MLCT遷移特有の吸収スペクトルであると考えられる。すなわち、 $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  は三重項励起状態への直接光励起や項間交差が可能な化合物であることが分かった。

【0187】

また、得られた  $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  を含むジクロロメタン溶液に酸素を含む気体を注入し、酸素を溶存させた状態で  $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  を発光させたときの発光強度を調べた。また、得られた  $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  を含むジクロロメタン溶液にアルゴンを注入し、アルゴンを溶存させた状態で  $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  を発光させたときの発光強度を調べた。その結果、 $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  由来の発光は酸素を溶存させた状態における発光強度よりもアルゴンを溶存させた状態における発光強度の方が強いという、燐光を発光する物質と同様の傾向を示すことが分かった。このことから、 $\text{Ir}(\text{dpq})_2(\text{acac})$  由来の発光は燐光であると考えられる。

【0188】

《合成例3》

本合成例では、構造式(56)で表されるビス{2,3-ビス(4-フルオロフェニル)キノキサリナト}イリジウム(III)ピコリネート〔略称：Ir(Fdpq)<sub>2</sub>(pic)〕の合成について説明する。

【0189】

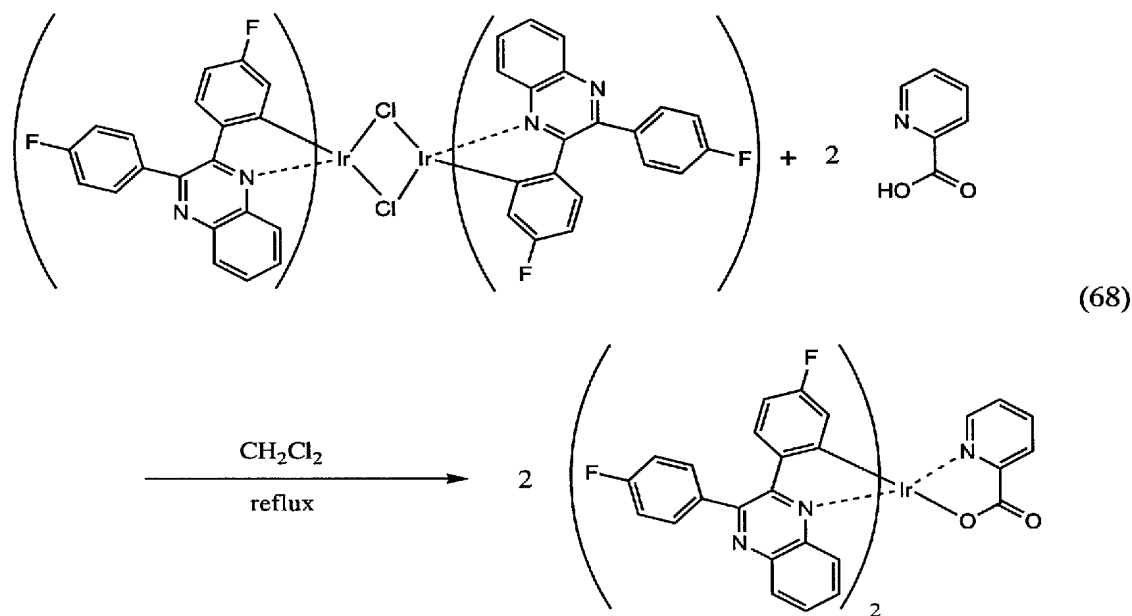
まず、原料としては、合成例1のステップ2で得られた複核錯体〔Ir(Fdpq)<sub>2</sub>Cl〕<sub>2</sub>を用いた。ジクロロメタン30mlを溶媒として、〔Ir(Fdpq)<sub>2</sub>Cl〕<sub>2</sub>を2.87g、ピコリン酸(Hpic)を1.67g混合し、窒素雰囲気下にて16時間還流した。これを濾過して、本発明の有機金属錯体Ir(Fdpq)<sub>2</sub>(pic)を得た(赤色粉末、収率56%)。合成スキームを下記式(68)に示す。本有機金属錯体Ir(Fdpq)<sub>2</sub>(pic)の核磁気共鳴分光法(<sup>1</sup>H-NMR)による分析結果は下記の通りであった。

【0190】

<sup>1</sup>H-NMR. δ(CDC1<sub>3</sub>): 8.66(d, 1H), 8.45(d, 1H), 8.04(m, 4H), 7.95(d, 1H), 7.81(m, 3H), 7.69(m, 2H), 7.59(t, 1H), 7.53(t, 1H), 7.33(m, 5H), 7.18(t, 1H), 7.07(t, 2H), 6.51(td, 1H), 6.38(m, 2H), 5.78(dd, 1H)

【0191】

【化63】



【0192】

また、得られたIr(Fdpq)<sub>2</sub>(pic)の分解温度T<sub>d</sub>を示唆熱重量同時測定装置(セイコー電子株式会社製, TG/DTA 320型)により測定したところ、T<sub>d</sub>=347℃であり、良好な耐熱性を示すことが分かった。

【0193】

また、得られたIr(Fdpq)<sub>2</sub>(pic)のジクロロメタン中における吸収スペクトルおよび発光スペクトル(PL)を図13に示す。なお、発光スペクトルは、ハロゲンランプの光をスリットによって分光して取り出した468nmの波長の光を励起光として用いたときに得られたものである。図13において、横軸は波長(nm)を表し、左縦軸は吸光度(単位無し)を表し、右縦軸は発光強度(任意単位)を表す。図13からも分かるように、得られた有機金属錯体Ir(Fdpq)<sub>2</sub>(pic)は複数の吸収ピークを有

している。また、発光スペクトルは625 nmに発光ピークを有する発光であった。そしてこの発光は、赤色と視認された。

#### 【0194】

長波長側の吸収ピークが可視光領域においてブロードな裾を引いており、三重項MLCT遷移特有の吸収スペクトルであると考えられる。すなわち、 $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{pic})$ は三重項励起状態への直接光励起や項間交差が可能な化合物であることが分かった。

#### 【0195】

##### 《合成例4》

本合成例では、構造式(57)で表されるビス{2,3-ビス(3,5-ジフルオロフェニル)キノキサリナト}イリジウム(III)アセチルアセトネート〔略称： $\text{Ir}(\text{3,5-Fdpq})_2(\text{acac})$ 〕の合成について説明する。

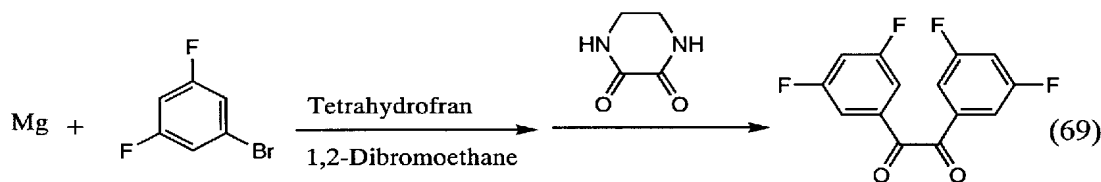
#### 【0196】

##### 〈ステップ1：3,3',5,5'-テトラフルオロベンジルの合成〉

配位子の原料である3,3',5,5'-テトラフルオロベンジルを、以下の要領にて合成する。まず、マグネシウム3.16 gとテトラヒドロフラン(略称：THF)3 mlを懸濁させ、少量の1,2-ジブromoエタンを加えた。これに対し、1-ブromo-3,5-ジフルオロベンゼン25.00 gにTHF 130 mlを加えた溶液を滴下し、加熱還流下1時間半撹拌した。次に、室温に冷却した溶液に1,4-ジメチルピペラジナー2,3-ジオン9.24 gを添加し、加熱還流下13時間撹拌した。さらに、室温に冷却した溶液に10%塩酸200 mlを加え、有機層をクロロホルムにて分取した。硫酸ナトリウムで乾燥した後、溶媒を濃縮した。最後にカラムクロマトグラフィー(ヘキサン/ジクロロメタン系)で精製することにより、3,3',5,5'-テトラフルオロベンジルを得た(黄色粉末、収率46%)。

#### 【0197】

##### 【化64】



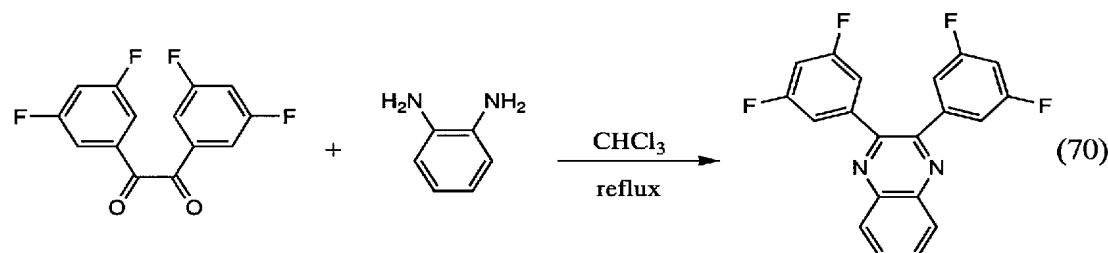
#### 【0198】

##### 〈ステップ2：配位子H(3,5-Fdpq)の合成〉

ステップ1にて合成した3,3',5,5'-テトラフルオロベンジル8.32 gと1,2-フェニレンジアミン3.19 gに、クロロホルム300 mlを加え、加熱還流下10時間撹拌した。室温に冷却した溶液を1N塩酸、次いで飽和食塩水にて洗浄し、硫酸ナトリウムで乾燥した後、溶媒を濃縮し、2,3-ビス(3,5-ジフルオロフェニル)キノキサリン(配位子H(3,5-Fdpq))を得た(白色粉末、収率98%)。合成スキームおよび配位子H(3,5-Fdpq)の構造式を下記式(70)に示す。

#### 【0199】

##### 【化65】



#### 【0200】

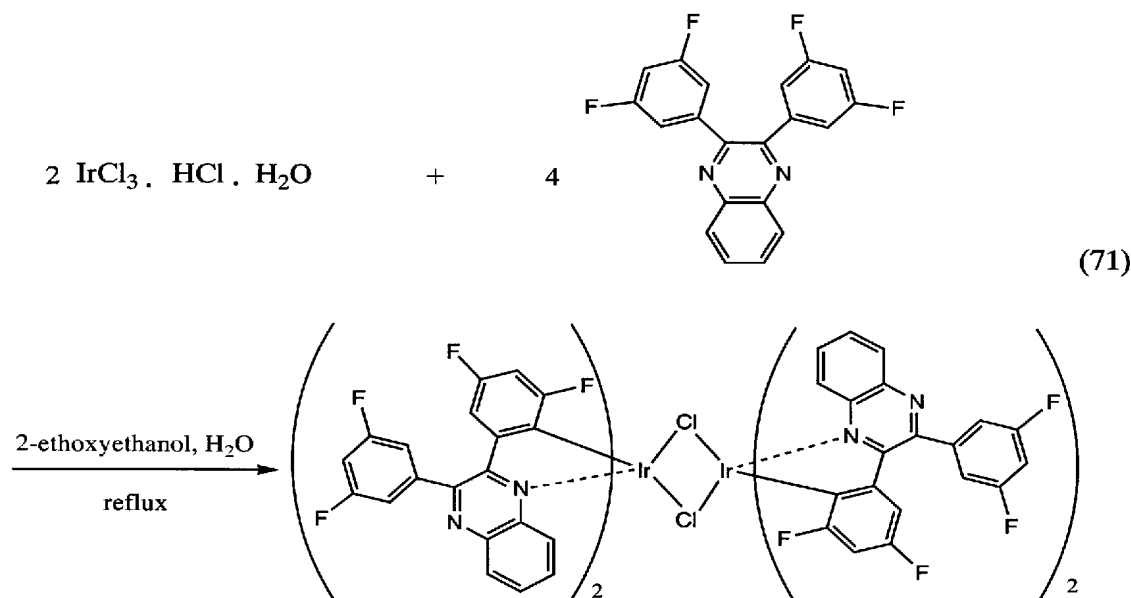


〈ステップ3：複核錯体  $[\text{Ir}(\text{3, 5-F dpq})_2\text{Cl}]_2$  の合成〉

2-エトキシエタノール 30 ml と水 10 ml との混合液を溶媒として、ステップ2により合成した配位子  $\text{H}(\text{3, 5-F dpq})$  を 2.46 g、塩化イリジウム ( $\text{IrCl}_3 \cdot \text{HCl} \cdot \text{H}_2\text{O}$ ) を 0.83 g 混合し、窒素雰囲気下 17 時間還流することにより、複核錯体  $[\text{Ir}(\text{3, 5-F dpq})_2\text{Cl}]_2$  を得た (赤褐色粉末、収率 78%)。合成スキームおよび複核錯体  $[\text{Ir}(\text{3, 5-F dpq})_2\text{Cl}]_2$  の構造式を下記式 (71) に示す。

【0201】

【化66】



【0202】

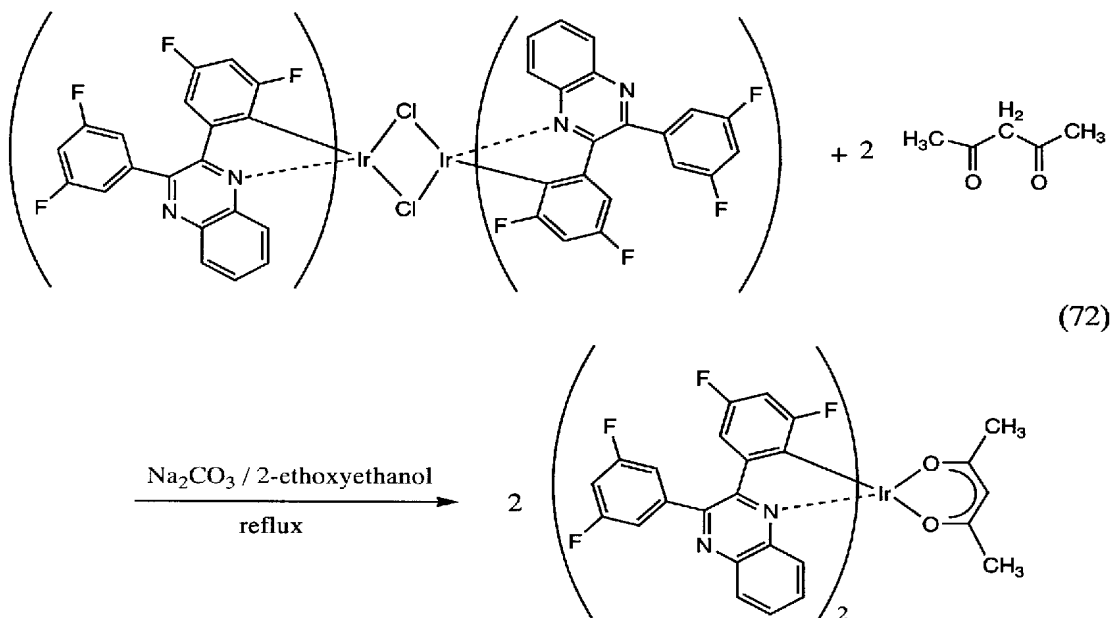
〈ステップ3：有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{3, 5-F dpq})_2(\text{acac})$  の合成〉

2-エトキシエタノール 30 ml を溶媒として、上記ステップ3で得られた複核錯体  $[\text{Ir}(\text{3, 5-F dpq})_2\text{Cl}]_2$  を 2.34 g、アセチルアセトン ( $\text{Hacac}$ ) を 0.39 ml、炭酸ナトリウムを 1.32 g 混合し、窒素雰囲気下にて 20 時間還流することにより、上記構造式 (67) で表される本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{3, 5-F dpq})_2(\text{acac})$  を得た (暗赤色粉末、収率 22%)。合成スキームを下記式 (70) に示す。本有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{3, 5-F dpq})_2(\text{acac})$  の核磁気共鳴分光法 ( $^1\text{H-NMR}$ ) による分析結果は下記のとおりであった。

【0203】

$^1\text{H-NMR}$ .  $\delta$  ( $\text{CDCl}_3$ ): 8.10 (t, 4H), 7.75 (t, 2H), 7.61 (m, 4H), 7.30 (m, 2H), 7.09 (tt, 2H), 6.77 (dd, 2H), 6.20 (td, 2H), 4.67 (s, 1H), 1.61 (s, 6H)

【0204】



## 【0205】

また、得られた  $\text{Ir}(\text{3,5-F dpq})_2(\text{acac})$  の分解温度  $T_d$  を示唆熱重量同時測定装置（セイコー電子株式会社製，TG/DTA 320 型）により測定したところ、 $T_d = 342^\circ\text{C}$  であり、良好な耐熱性を示すことが分かった。

## 【0206】

また、得られた  $\text{Ir}(\text{3,5-F dpq})_2(\text{acac})$  のジクロロメタン中における吸収スペクトルおよび発光スペクトル（PL）を図 14 に示す。なお、発光スペクトルは、ハロゲンランプの光をスリットによって分光して取り出した  $468\text{ nm}$  の波長の光を励起光として用いたときに得られたものである。図 14 において、横軸は波長（ $\text{nm}$ ）を表し、左縦軸は吸光度（単位無し）を表し、右縦軸は発光強度（任意単位）を表す。図 14 から分かるように、得られた有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{3,5-F dpq})_2(\text{acac})$  は複数の吸収ピークを有している。また、発光スペクトルは  $666\text{ nm}$  に発光ピークを有する発光であった。そしてこの発光は、深い赤色と視認された。

## 【0207】

長波長側の吸収ピークが可視光領域においてブロードな裾を引いており、三重項 MLCT 遷移特有の吸収スペクトルであると考えられる。すなわち、 $\text{Ir}(\text{3,5-F dpq})_2(\text{acac})$  は三重項励起状態への直接光励起や項間交差が可能な化合物であることが分かった。

## 【0208】

## 《合成例 5》

本合成例では、構造式（58）で表されるビス{2,3-ビス（3,5-ジフルオロフェニル）キノキサリナト}イリジウム（III）ピコリネート（略称： $\text{Ir}(\text{3,5-F dpq})_2(\text{pic})$ ）の合成について説明する。

## 【0209】

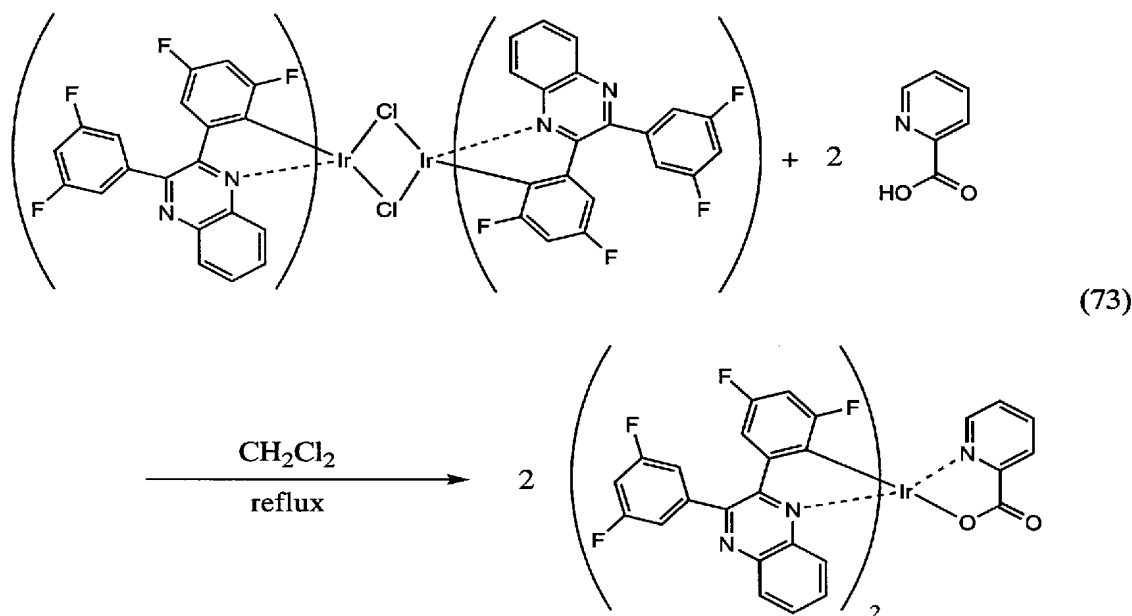
ジクロロメタン  $30\text{ ml}$  を溶媒として、合成例 4 ステップ 3 により合成した複核錯体  $[\text{Ir}(\text{3,5-F dpq})_2\text{Cl}]_2$  を  $2.54\text{ g}$ 、ピコリン酸（ $\text{Hp ic}$ ）を  $1.34\text{ g}$  混合し、窒素雰囲気下にて  $16$  時間還流した。これを濾過して、本発明の有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{3,5-F dpq})_2(\text{pic})$  を得た（赤色粉末、収率  $14\%$ ）。合成スキームを下記式（73）に示す。本有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{3,5-F dpq})_2(\text{pic})$  の核磁気共鳴分光法（ $^1\text{H-NMR}$ ）による分析結果は下記の通りであった。

## 【0210】

$^1\text{H-NMR}$ .  $\delta$  ( $\text{CDCl}_3$ ): 8.65 (d, 1H), 8.54 (d, 1H), 8.06 (m, 2H), 7.87–7.54 (m, 8H), 7.32 (m, 3H), 7.12 (m, 3H), 6.85 (d, 1H), 6.74 (d, 1H), 6.37 (t, 1H), 6.17 (t, 1H)

【0211】

【化68】



【0212】

また、得られた  $\text{Ir}(\text{3,5-F dpq})_2(\text{pic})$  の分解温度  $T_d$  を示唆熱重量同時測定装置（セイコー電子株式会社製，TG/DTA 320型）により測定したところ、 $T_d = 347^\circ\text{C}$  であり、良好な耐熱性を示すことが分かった。

【0213】

また、得られた  $\text{Ir}(\text{3,5-F dpq})_2(\text{pic})$  のジクロロメタン中における吸収スペクトルおよび発光スペクトル（PL）を図15に示す。なお、発光スペクトルは、ハロゲンランプの光をスリットによって分光して取り出した468nmの波長の光を励起光として用いたときに得られたものである。図15において、横軸は波長（nm）を表し、左縦軸は吸光度（単位無し）を表し、右縦軸は発光強度（任意単位）を表す。図15からも分かるように、得られた有機金属錯体  $\text{Ir}(\text{3,5-F dpq})_2(\text{pic})$  は複数の吸収ピークを有している。また、発光スペクトルは645nmに発光ピークを有する発光であった。そしてこの発光は、赤色と視認された。

【0214】

長波長側の吸収ピークが可視光領域においてブロードな裾を引いており、三重項MLCT遷移特有の吸収スペクトルであると考えられる。すなわち、 $\text{Ir}(\text{3,5-F dpq})_2(\text{pic})$  は三重項励起状態への直接光励起や項間交差が可能な化合物であることが分かった。

【0215】

合成例1～合成例5に記載の本発明の有機金属錯体は、発光材料、または光増感剤として用いることができる。

【実施例2】

【0216】

本実施例では、本発明の有機金属錯体を発光物質として用いた発光素子、およびその製造方法について図16を用いて説明する。

【0217】

基板 850 上に、インジウム錫酸化物を、スパッタリング法を用いて成膜し、第 1 の電極 851 を形成した。膜厚は 110 nm となるようにした。

#### 【0218】

次に、第 1 の電極 851 が形成された基板 850 を、真空蒸着装置内に設けられた基板ホルダーに、第 1 の電極 851 が形成された面を下方となるように固定した。

#### 【0219】

次に、第 1 の電極 851 上に、銅フタロシアニンを用いた蒸着法を用いて 20 nm の膜厚となるように成膜し、正孔注入層 852 を形成した。

#### 【0220】

次に、正孔注入層 852 上に、 $\alpha$ -NPD を、抵抗加熱法を用いた蒸着法を用いて、40 nm の膜厚となるように成膜し、正孔輸送層 853 を形成した。

#### 【0221】

次に、正孔輸送層 853 上に、 $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  と TPAQn とを共蒸着によって、30 nm の膜厚となるように成膜し、発光層 854 を形成した。ここで、 $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  と TPAQn とは、TPAQn から成る層中に、 $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  が 8 質量% の割合で含まれるようにした。これによって、 $\text{Ir}(\text{Fdpq})_2(\text{acac})$  は TPAQn から成る層中に分散した状態となる。なお、共蒸着法とは、複数の蒸発源から同時に蒸着を行う蒸着法である。

#### 【0222】

次に、発光層 854 上に、 $\text{Alq}_3$  を、抵抗加熱法を用いた蒸着法を用いて、30 nm の膜厚となるように成膜し、電子輸送層 855 を形成した。

#### 【0223】

次に、電子輸送層 855 上に、弗化カルシウムを用いた蒸着法を用いて、2 nm の膜厚となるように成膜し、電子注入層 856 を形成した。

#### 【0224】

次に、電子注入層 856 上に、アルミニウムを用いた蒸着法を用いて、150 nm の膜厚となるように成膜し、第 2 の電極 857 を形成した。

#### 【0225】

以上のようにして作製した発光素子に、第 2 の電極 857 の電位よりも第 1 の電極 851 の電位の方が高くなるように電圧を印加した。そして、7.6 V の電圧を印加したとき、 $466 \text{ cd/m}^2$  の輝度で発光した。このときの電流効率は  $1.56 \text{ cd/A}$  であった。また、発光スペクトルは、652 nm にピークを有していた。発光スペクトルを図 17 に示す。また、CIE 色度座標は  $(X, Y) = (0.65, 0.33)$  であった。

#### 【0226】

このように、本発明の有機金属錯体を用いることで、色度が良く、良好な赤色系の発光を呈することのできる発光素子を得ることができる。また、本実施例の発光素子のように本発明の有機金属錯体とキノキサリン誘導体とを組み合わせることで、発光層を形成することで、本発明の有機金属錯体をより効率良く発光させることができる。

#### 【0227】

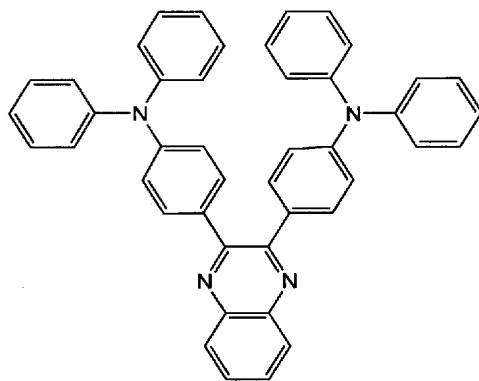
なお、本発明の有機金属錯体として用いた本発明の発光素子を作製するために用いる物質は、上記に記載したものに限定されるものではなく、本実施例に記載した物質の他、実施の形態 3 に記載した物質、その他の公知物質等を用いてもよい。また、発光素子の層構造についても、本実施例に記載したものには限定されず、適宜変更して構わない。また、発光素子の製造方法についても特に限定はなく、本実施例のように、陽極として機能する電極から順に作製する他、陰極として機能する電極から順に作製してもよい。

#### 【実施例 3】

#### 【0228】

実施例 2 で用いた TPAQn は新規な物質である。本実施例では構造式 (74) で表されるキノキサリン誘導体の製造方法について説明する。

#### 【0229】



(74)

## 【0230】

## 【2,3-ビス(4-ブロモフェニル)キノキサリンの合成】

まず、10 g (27.4 mmol) の4-ブロモベンジルと3.5 g (33.5 mmol) の $\alpha$ -フェニレンジアミンを500 ml のナス型フラスコに入れ、クロロホルム中にて8時間攪拌・還流を行った。次に、室温まで冷却後、カラムクロマトグラフィーにより残留した $\alpha$ -フェニレンジアミンを除去し、2,3-ビス(4-ブロモフェニル)キノキサリンを得た。

## 【0231】

## 【TPAQnの合成】

さらに、上記で得られた2,3-ビス(4-ブロモフェニル)キノキサリンを4.40 g (10.0 mmol) 秤量して三つ口フラスコに入れ、窒素気流下にて75 ml のトルエンに溶解させた。次に、0.22 g (0.2 mmol) のPd(dba)<sub>2</sub>、2.88 g (30 mmol) のNaO-t-Bu、3.46 g (20.4 mmol) のジフェニルアミンを加え、さらにトリ(t-ブチルホスフィン)の10 wt %ヘキサン溶液を1.8 ml 加え、80℃にて8時間加熱攪拌した。

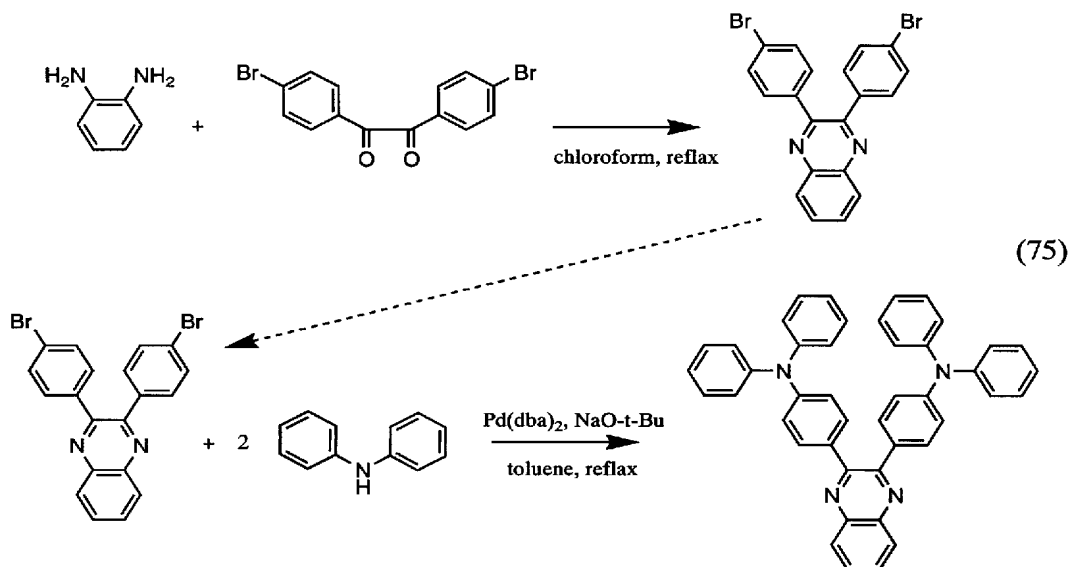
## 【0232】

次に、室温まで冷却後、水を加えて反応を終了させ、クロロホルムで抽出を行った。さらに飽和食塩水で洗浄後、MgSO<sub>4</sub>で乾燥させた。その後、クロロホルムから再結晶を行い、2,3-ビス(4-ジフェニルアミノフェニル)キノキサリン(略称:TPAQn)を得た(黄緑色結晶、収量2.7 g(収率:44%))。

## 【0233】

以上に説明した合成の合成スキーム(75)を次に示す。

## 【0234】



【0 2 3 5】

図 1 8 に、合成によって得られた T P A Q n の  $^1\text{H-NMR}$  チャートを示す。

【0 2 3 6】

なお、得られた T P A Q n の分解温度は  $411^\circ\text{C}$  であった。なお、測定は示吸熱熱重量同時測定装置（セイコー電子株式会社製，T G / D T A 3 2 0 型）を用いて行った。

【図面の簡単な説明】

【0 2 3 7】

【図 1】本発明の発光素子について説明する図。

【図 2】本発明の発光素子について説明する図。

【図 3】本発明の発光素子について説明する図。

【図 4】本発明の発光素子について説明する図。

【図 5】本発明を適用した発光装置について説明する図。

【図 6】本発明を適用した発光装置に含まれる回路について説明する図。

【図 7】本発明を適用した発光装置の上面図。

【図 8】本発明を適用した発光装置のフレーム動作について説明する図。

【図 9】本発明を適用した発光装置の断面図。

【図 1 0】本発明を適用した電子機器の図。

【図 1 1】本発明の有機金属錯体の発光スペクトル、吸収スペクトルを表す図。

【図 1 2】本発明の有機金属錯体の発光スペクトル、吸収スペクトルを表す図。

【図 1 3】本発明の有機金属錯体の発光スペクトル、吸収スペクトルを表す図。

【図 1 4】本発明の有機金属錯体の発光スペクトル、吸収スペクトルを表す図。

【図 1 5】本発明の有機金属錯体の発光スペクトル、吸収スペクトルを表す図。

【図 1 6】本発明の発光素子について説明する図。

【図 1 7】本発明の発光素子の発光スペクトルを示す図。

【図 1 8】T P A Q n の  $^1\text{H-NMR}$  チャート。

【符号の説明】

【0 2 3 8】

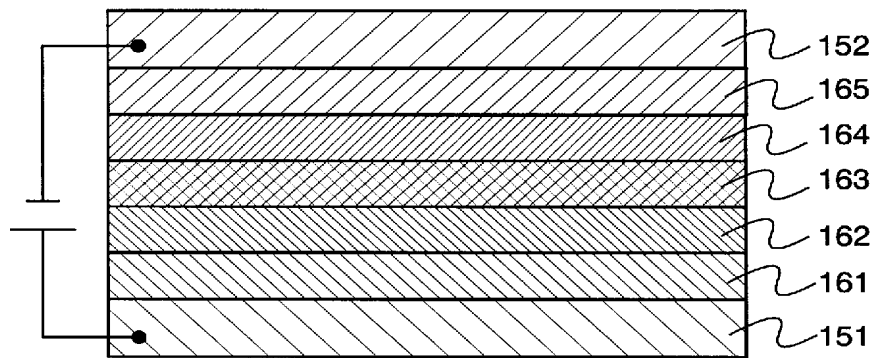
- 1 5 1 第 1 の電極
- 1 5 2 第 2 の電極
- 1 6 1 正孔注入層
- 1 6 2 正孔輸送層
- 1 6 3 発光層

1 6 4	電子輸送層
1 6 5	電子注入層
7 5 1	第 1 の電極
7 5 2	第 2 の電極
7 6 1	電子注入層
7 6 2	電子輸送層
7 6 3	第 1 の発光層
7 6 4	隔壁層
7 6 5	第 2 の発光層
7 6 6	正孔輸送層
7 6 7	正孔注入層
7 7 1	第 1 の電極
7 7 2	第 2 の電極
7 8 1	電子注入層
7 8 2	電子輸送層
7 8 3	第 1 の発光層
7 8 4	正孔輸送層
7 8 5	第 1 の層
7 8 6	第 2 の層
7 8 7	電子輸送層
7 8 8	第 2 の発光層
7 8 9	正孔輸送層
7 9 0	正孔注入層
1 8 1	第 1 の電極
1 8 2	第 2 の電極
1 9 1	正孔輸送層
1 9 2	正孔注入層
1 9 3	発光層
1 9 4	電子輸送層
1 9 5	電子注入層
6 5 0 0	基板
6 5 0 3	F P C (フレキシブルプリントサーキット)
6 5 0 4	プリント配線基盤 (P W B)
6 5 1 1	画素部
6 5 1 2	ソース信号線駆動回路
6 5 1 3	書込用ゲート信号線駆動回路
6 5 1 4	消去用ゲート信号線駆動回路
9 0 1	第 1 のトランジスタ
9 0 2	第 2 のトランジスタ
9 0 3	発光素子
9 1 1	ゲート信号線
9 1 2	ソース信号線
9 1 3	書込用ゲート信号線駆動回路
9 1 4	消去用ゲート信号線駆動回路
9 1 5	ソース信号線駆動回路
9 1 6	電源
9 1 7	電流供給線
9 1 8	スイッチ
9 1 9	スイッチ
9 2 0	スイッチ

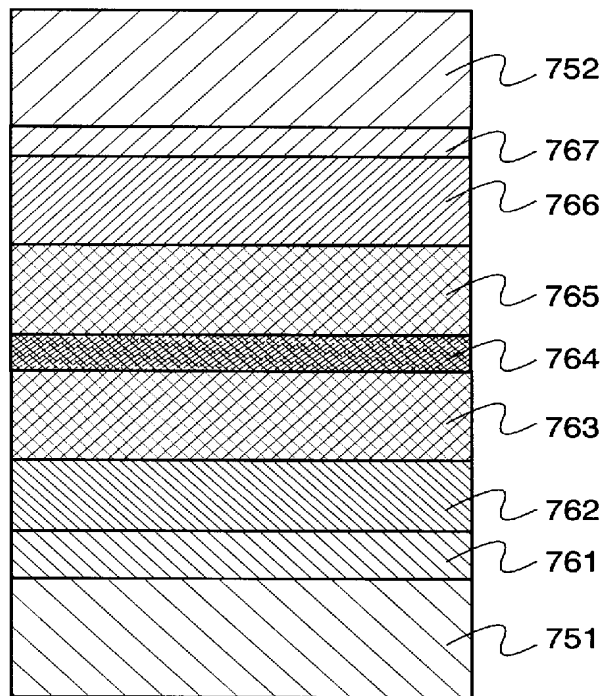
1 0 0 1	第 1 のト ラ ン ジ ス タ
1 0 0 2	第 2 のト ラ ン ジ ス タ
1 0 0 3	ゲ ー ト 信 号 線
1 0 0 4	ソ ー ス 信 号 線
1 0 0 5	電 流 供 給 線
1 0 0 6	電 極
5 0 1	サ ブ フ レ ー ム
5 0 2	サ ブ フ レ ー ム
5 0 3	サ ブ フ レ ー ム
5 0 4	サ ブ フ レ ー ム
5 0 1 a	書 込 期 間
5 0 1 b	保 持 期 間
5 0 2 a	書 込 期 間
5 0 2 b	保 持 期 間
5 0 3 a	書 込 期 間
5 0 3 b	保 持 期 間
5 0 4 a	書 込 期 間
5 0 4 b	保 持 期 間
5 0 4 c	消 去 期 間
5 0 4 d	非 発 光 期 間
1 0	基 板
1 1	ト ラ ン ジ ス タ
1 2	発 光 素 子
1 3	第 1 の 電 極
1 4	第 2 の 電 極
1 5	層
1 6	層 間 絶 縁 膜
1 7	配 線
1 8	隔 壁 層
1 9	層 間 絶 縁 膜
5 5 2 1	本 体
5 5 2 2	筐 体
5 5 2 3	表 示 部
5 5 2 4	キ ー ボ ー ド
5 5 5 1	表 示 部
5 5 5 2	本 体
5 5 5 3	ア ン テ ナ
5 5 5 4	音 声 出 力 部
5 5 5 5	音 声 入 力 部
5 5 5 6	操 作 ス イ ッ チ
5 5 3 1	表 示 部
5 5 3 2	筐 体
5 5 3 3	ス ピ ー カ ー
8 5 0	基 板
8 5 1	第 1 の 電 極
8 5 2	正 孔 注 入 層
8 5 3	正 孔 輸 送 層
8 5 4	発 光 層
8 5 5	電 子 輸 送 層
8 5 6	電 子 注 入 層



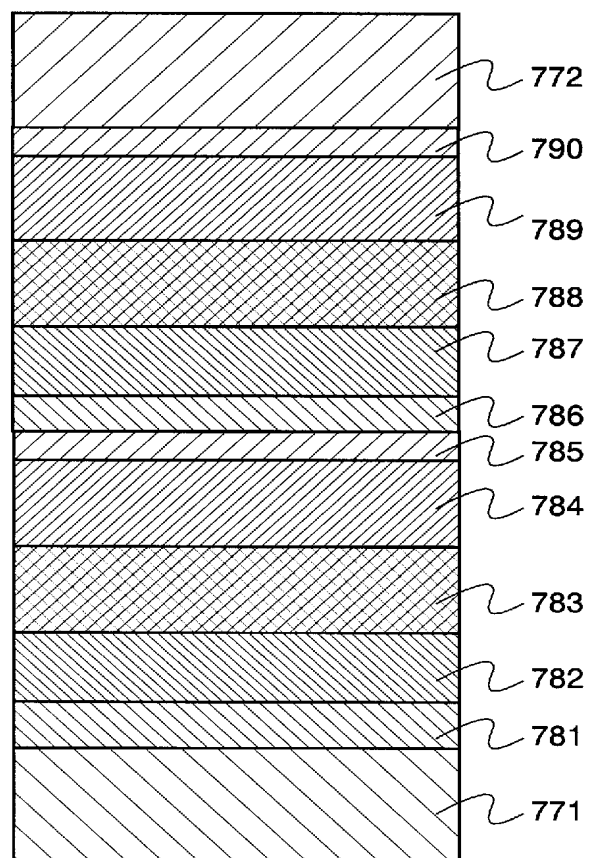




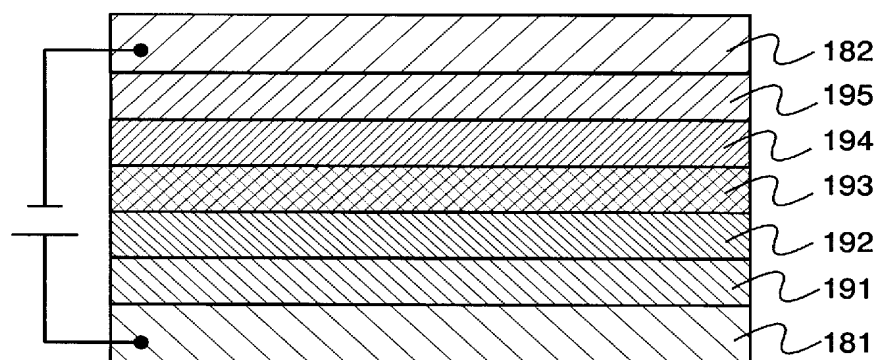
【図 2】



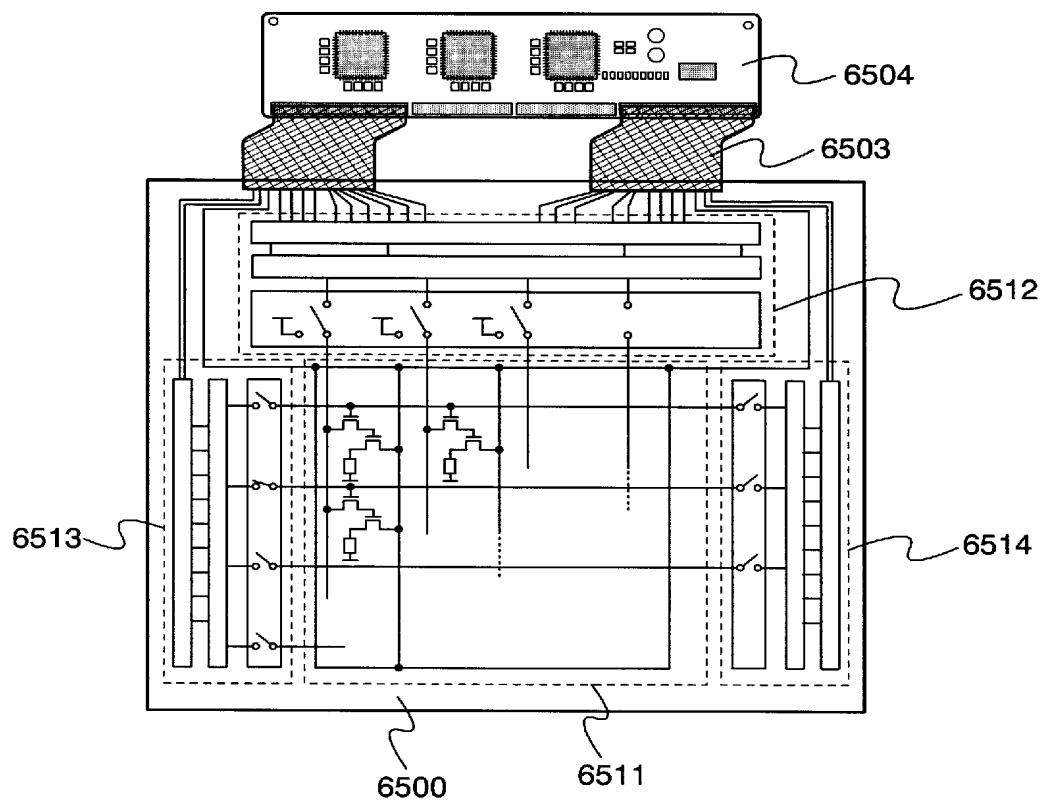
【图 3】



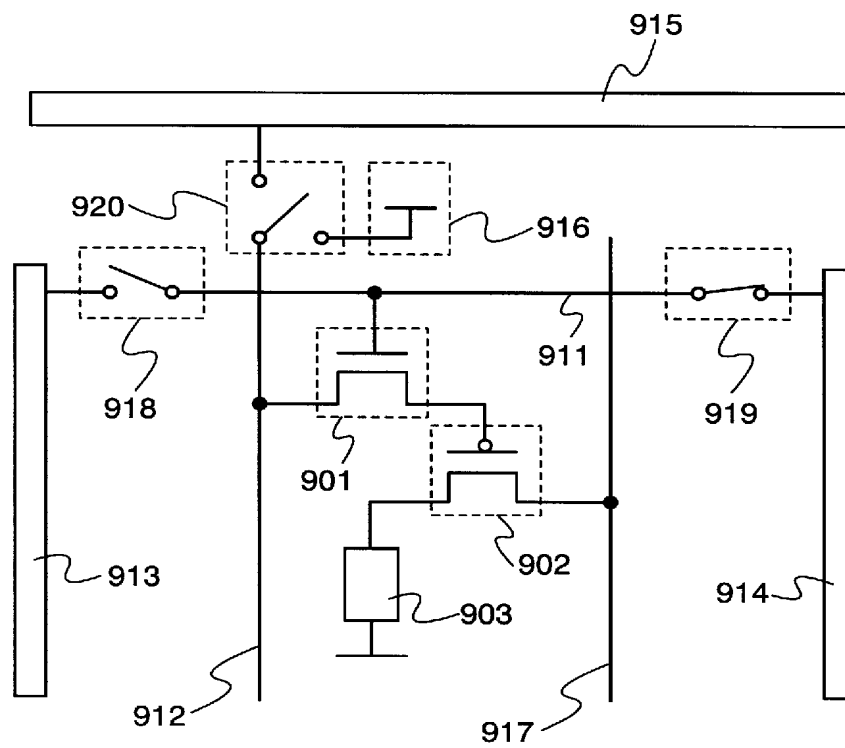
【图 4】

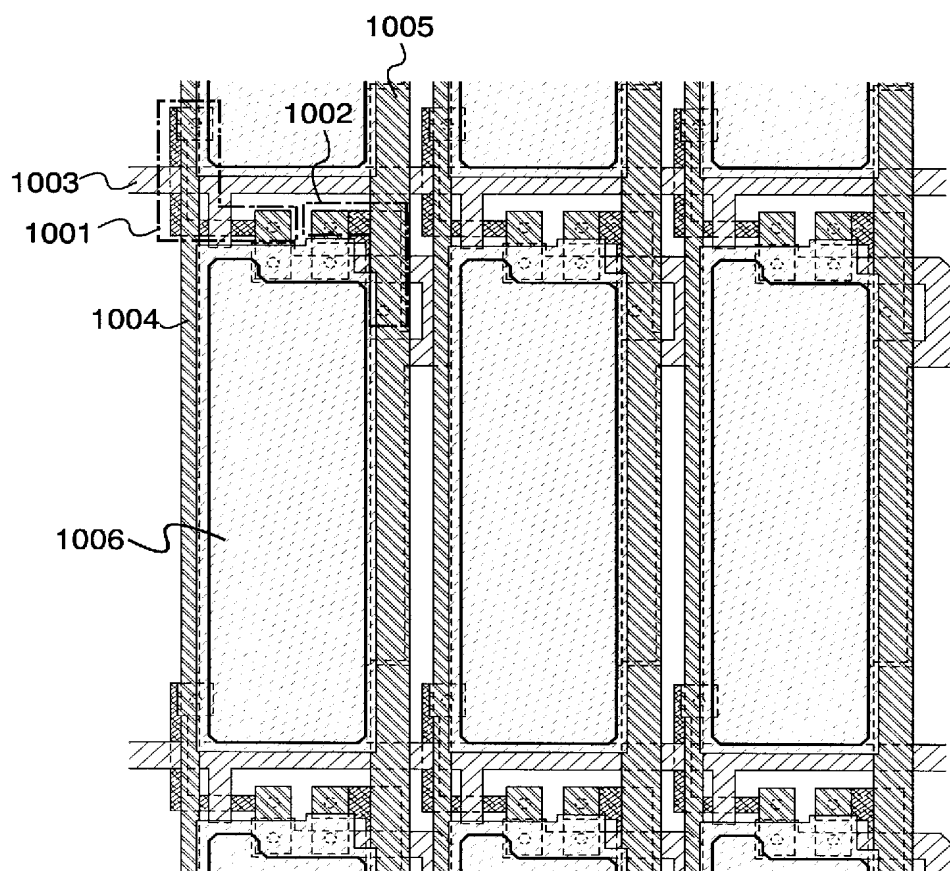


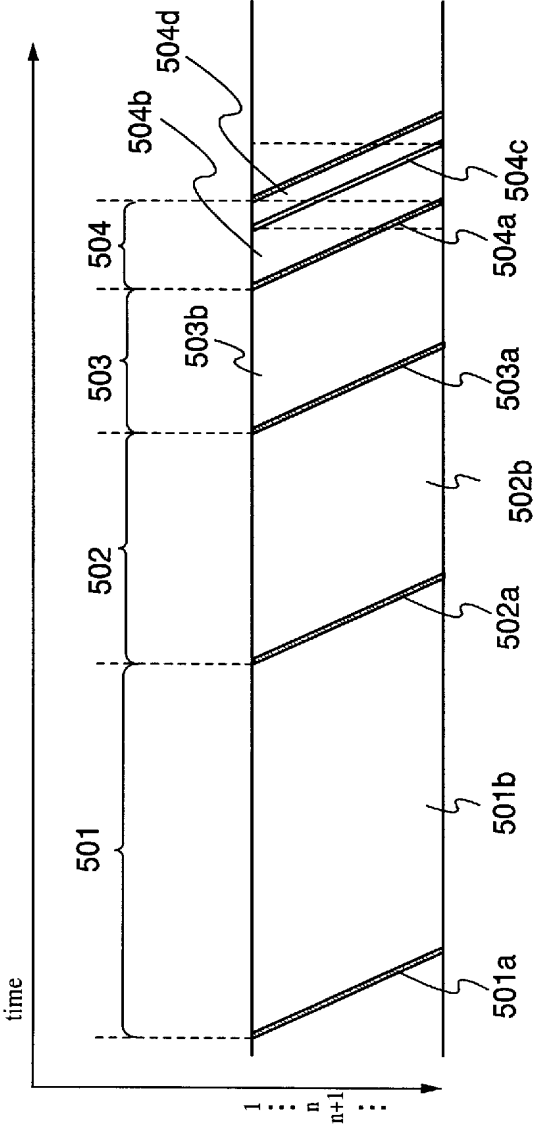
【図 5】

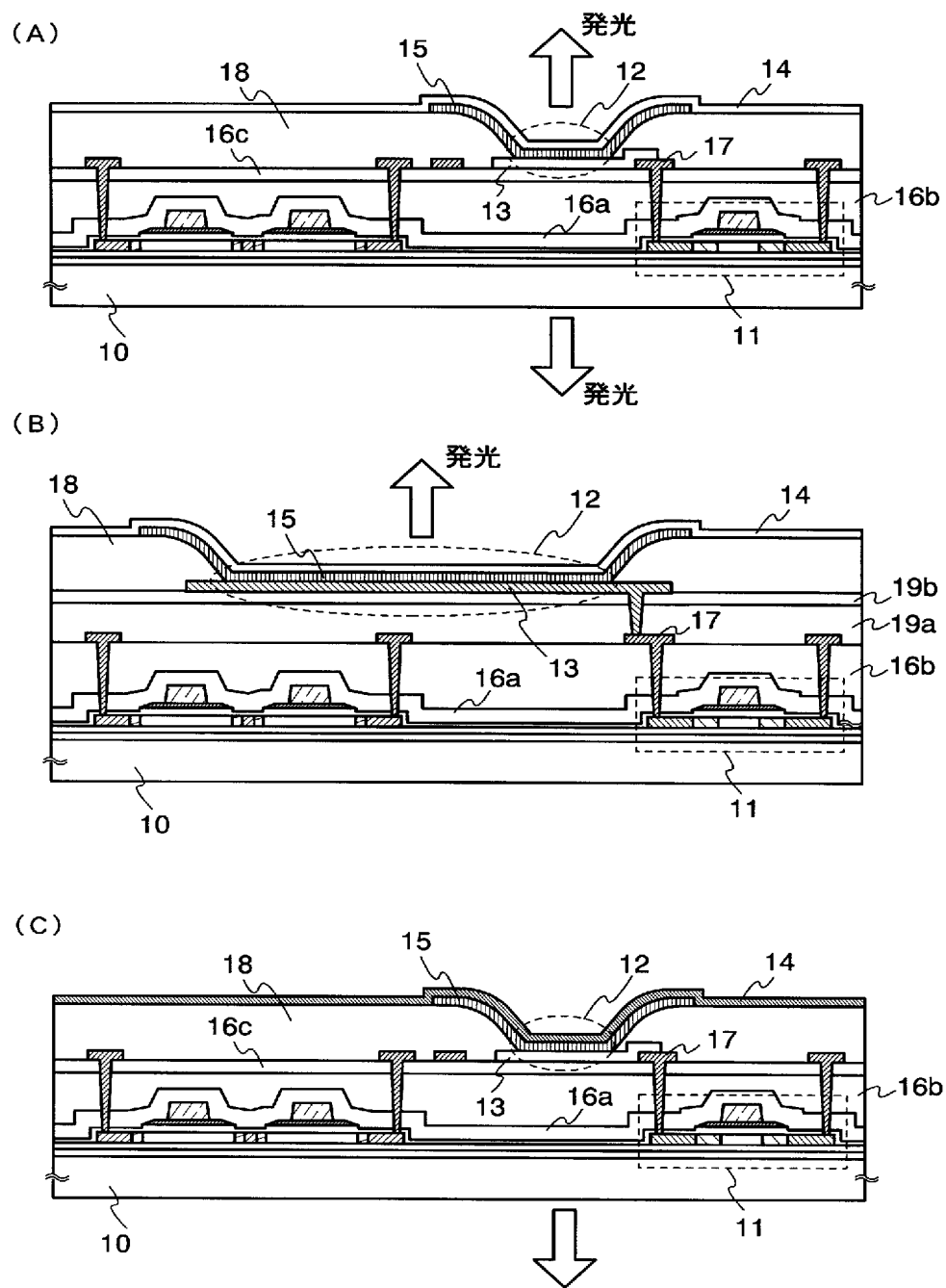


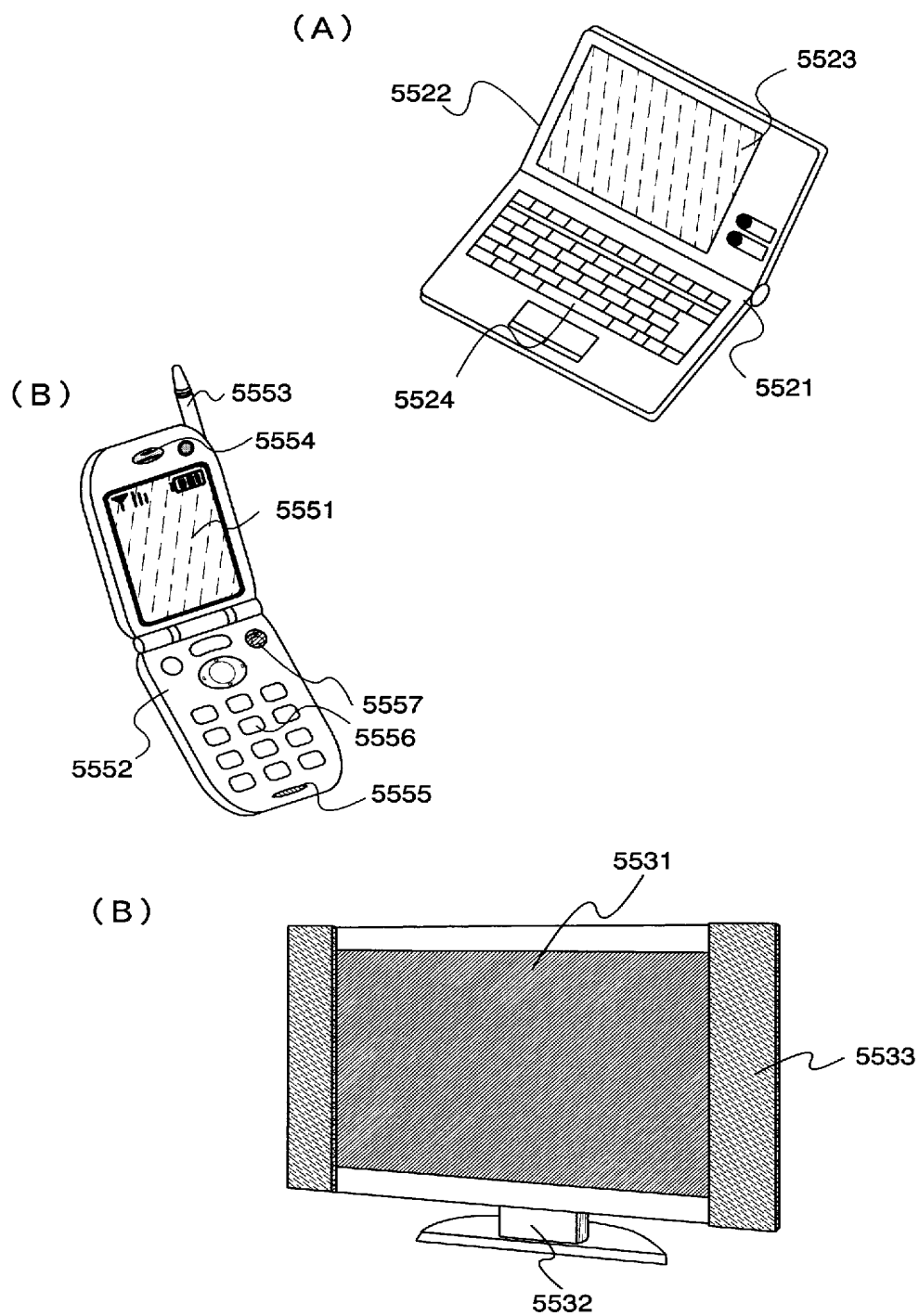
【図 6】





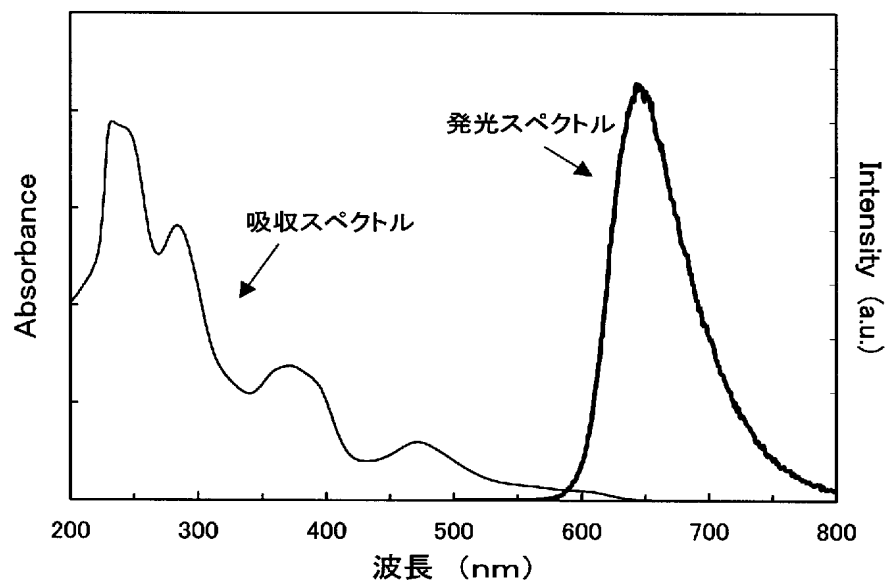




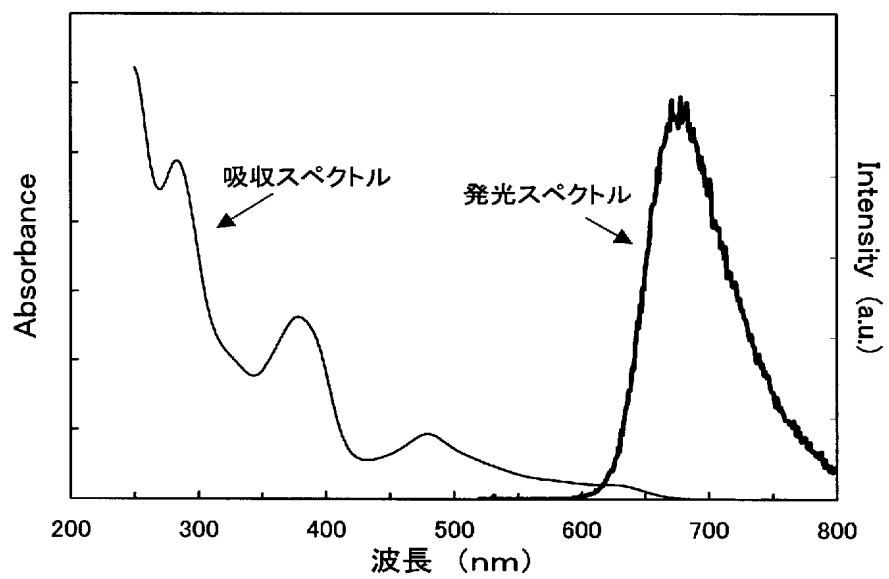




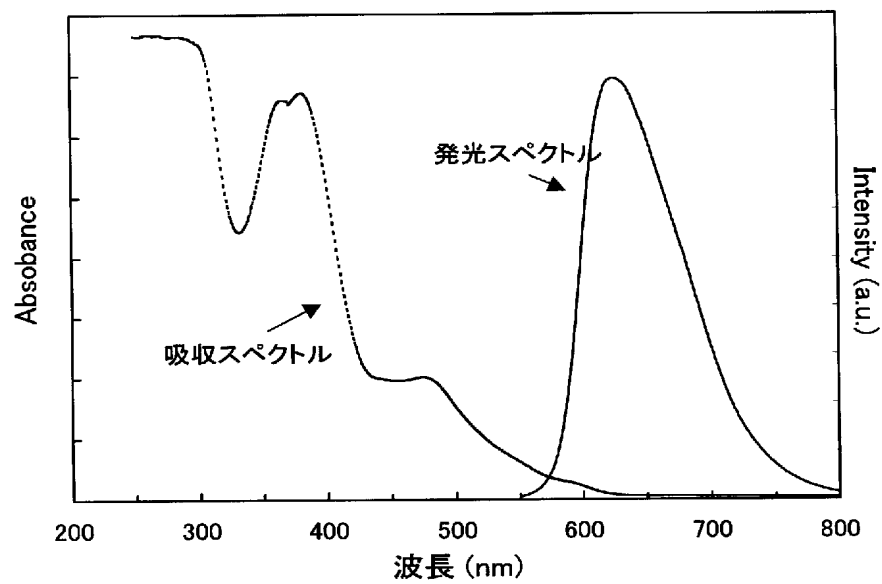
【図 1 1】



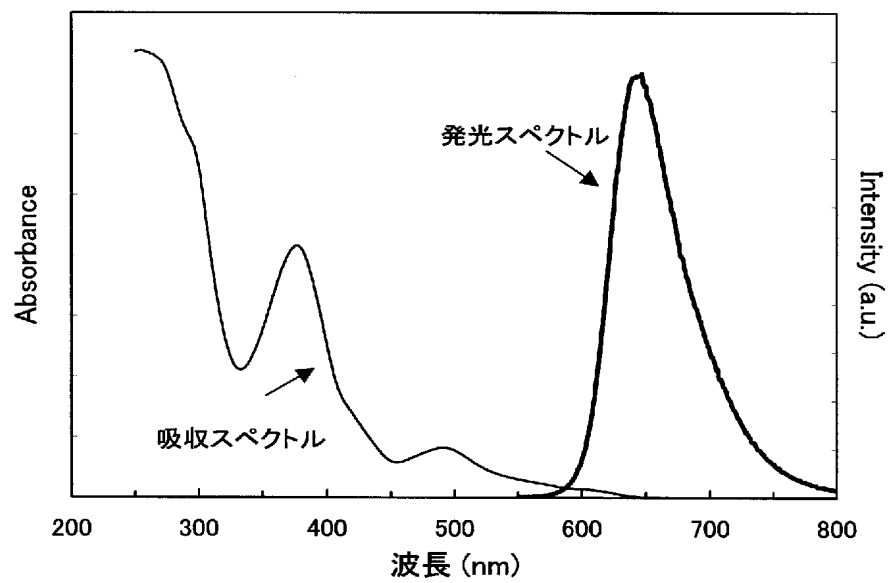
【図 1 2】



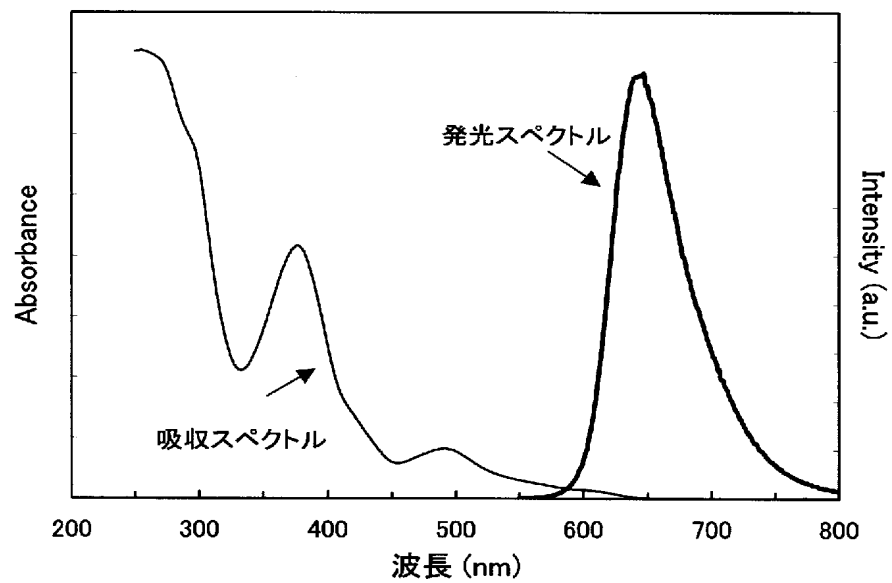
【図 1 3】



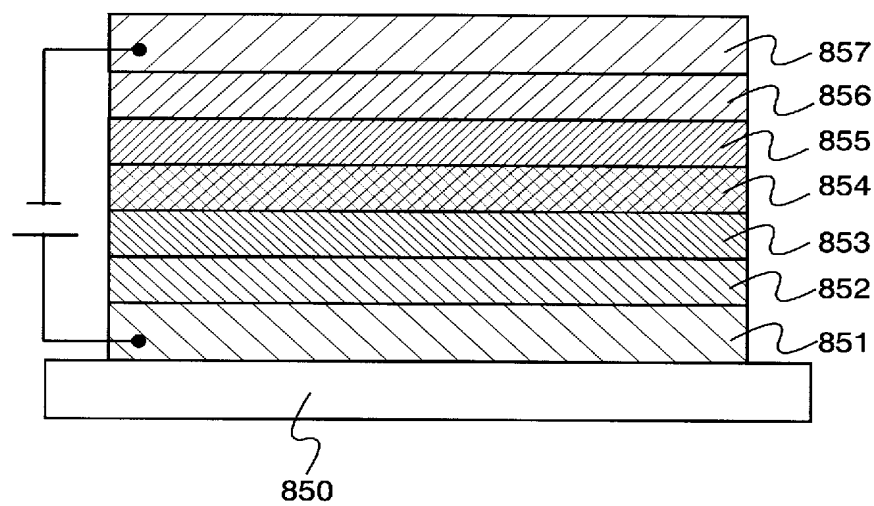
【図 1 4】



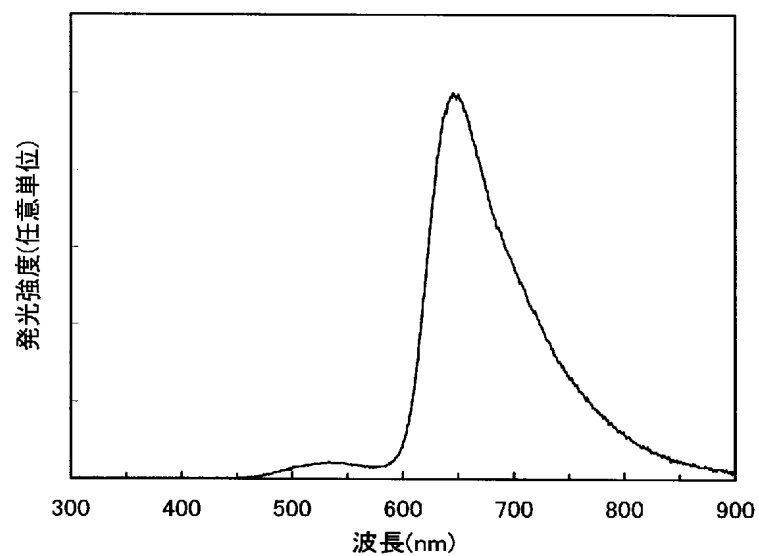
【図 15】

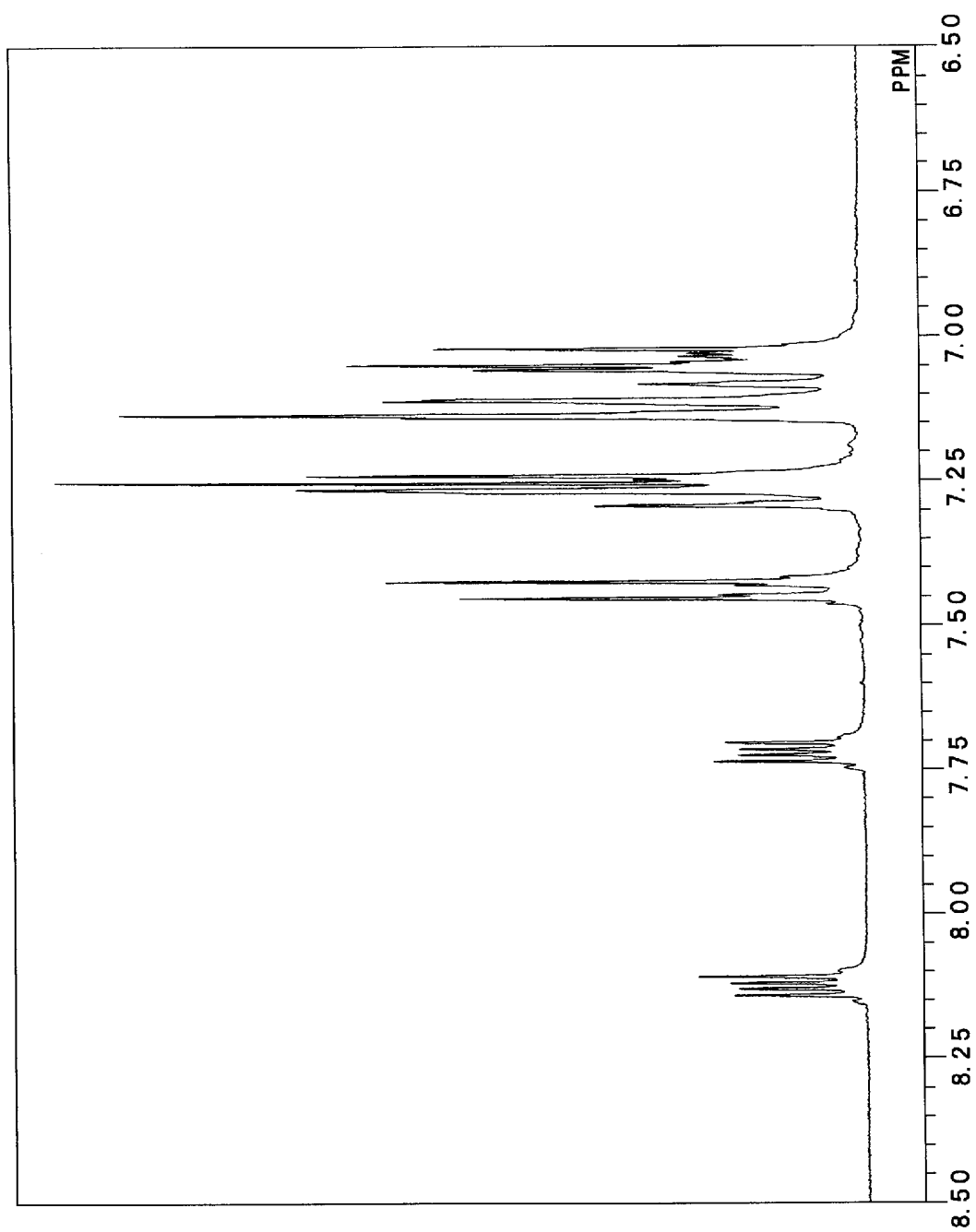


【図 16】



【 図 1 7 】





【書類名】要約書

【要約】

【課題】 本発明は、燐光を発光することのできる物質を提供することを課題とする。また、本発明は、色度の良い発光素子を提供することを課題とする。

【解決手段】 一般式（１）で表される構造を含む有機金属錯体。一般式（１）において、 $R^1 \sim R^5$ は、それぞれ、水素、ハロゲン元素、アシル基、アルキル基、アルコキシル基、アリール基、シアノ基、複素環基のいずれかを表す。Arはアリール基または複素環基を表す。また、Mは第９族元素または第１０族元素を表す。

【化１】

## 出願人履歴

0 0 0 1 5 3 8 7 8

19900817

新規登録

神奈川県厚木市長谷3 9 8 番地

株式会社半導体エネルギー研究所